

核断熱消磁冷却

矢山, 英樹
九州大学大学院理学研究院物理学部門

<https://doi.org/10.15017/24694>

出版情報：九州大学低温センターだより. 6, pp.21-26, 2012-03. 九州大学低温センター
バージョン：
権利関係：

核断熱消磁冷却*

矢山英樹

九州大学 理学研究院 物理学部門

核断熱消磁法の基本は、常磁性塩の断熱消磁法と同じ物理的原理である。しかし、次のような違いがある。電子スピン系の代わりに、核スピン系が冷却に用いられる。最低温度は、核スピンの自発的秩序で決まり、電子スピンの断熱消磁よりも低い。なぜなら核の磁子は電子の磁子の $1/2000$ 程度に小さいからである。もし核スピンのダイポール-ダイポール相互作用だけを考慮すれば、磁氣的秩序温度は 10^{-7} K オーダーである[1]。

核断熱消磁を行なうには、電子スピンの断熱消磁よりもさらに複雑な実験技術が必要である。それには、より低い出発温度と高い出発磁場が要求される。なぜなら、電子スピンの断熱消磁と同じエントロピー減少に到達するためには、磁場と温度の比 B_i/T_i を 2000 倍大きくしなければならないからである。

核断熱消磁法は、1934年に C.J. Gorter[2]と N. Kurti and F.E. Simon[3]によって提案され、1956年に N. Kurti, F.N. Robinson, F.E. Simon ら[4]によって実現された。この方法は、今日では非常にポピュラーでパワフルな希釈冷凍機と組合せて実験試料を 10^{-4} K オーダーの温度に冷却するのに用いられる。

1 熱力学的関係

常磁性塩の断熱消磁法の章に示された電子スピン系に対する表式は、Bohr 磁子を核磁子 $\beta_n = 5.05 \times 10^{-27}$ Am² に変え、核のランデ因子と核のキュリー定数を用いれば、核スピン系に対しても用いることができる。核スピン系が外部磁場中に置かれた場合、常磁性塩の断熱消磁法から類推してエントロピーを求めることが可能である。1モルの物質に対してそれは、

$$\frac{S}{R} = \ln(2I+1) = \frac{1}{2\mu_0} K \frac{B^2 + B_{int}^2}{T^2}.$$

ここで、 K はモルキュリー定数である。

$$K = \frac{R}{3} I(I+1) \frac{g_n^2 \beta_n^2 \mu_0}{k^2}.$$

磁場中での核スピン系の比熱は次式で与えられる。

$$C_B = \frac{K(B^2 + B_{int}^2)}{\mu_0 T^2}.$$

* 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。

磁化は温度一定あるいは磁場一定で行なわれる。温度一定，すなわち $T = T_i$ の等温条件で，ゆっくり磁場を B_i まで増加させるときの磁化熱は次の式で表わされる。

$$\Delta Q_T = T_i \Delta S = -\frac{K(B_i^2 + B_{int}^2)}{2\mu_0 T_i},$$

ここで， ΔQ_T は磁化熱である。一方，磁化一定すなわち $B = B_i$ で，ある温度 T_0 から T_i まで冷却するときの排熱量は ($T_0 = \infty$ の場合) 次のように計算できる。

$$\Delta Q_B = \int_{T_0}^{T_i} C_n dT = -\frac{K(B_i^2 + B_{int}^2)}{\mu_0 T_i}.$$

明らかに $\Delta Q_T < \Delta Q_B$ であるが，磁化過程は比較的高い温度 (100 mK 以上) で磁場を B_i まで増加させ，その後マグネットを永久電流モードにする方がよい。こうすると，液体ヘリウムの消費量を抑えることができ，経済的である。断熱消磁によって到達できる最低温度は次式で与えられる。

$$T_f^2 = \frac{B_f^2 + B_{int}^2}{B_i^2 + B_{int}^2} T_i^2. \quad (1)$$

ここで， B_f は断熱消磁後の外部磁場である。電子スピンの断熱消磁の場合と同様に，この式は消磁が断熱的に行なわれ，過程が可逆的である場合に成り立つ。

2 伝導電子系と試料の冷却

核断熱消磁では，核スピン系と試料との間の熱交換および熱平衡の問題が生じる。いま，銅の核が冷媒で ^3He が試料だとしよう。この場合，3つの熱浴が存在する (図1参照)。

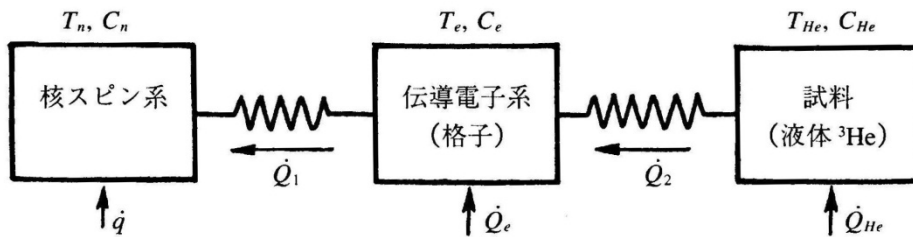


図 1 核断熱消磁における熱浴と熱抵抗 [11]

すなわち，銅の核スピンと，銅の伝導電子系，そして ^3He 系であり，それぞれの温度を T_n, T_e, T_{He} ，熱容量を C_n, C_e, C_{He} とする。銅結晶格子のフォノンの熱容量は T^3 に比例するから，核断熱消磁の温度範囲では伝導電子による比熱に比べてそれは無視できる。したがって，格子の温度は T_e である。核スピン系と伝導電子系との間の熱抵抗はスピン-格子緩和時間 τ_1 で決まる。 τ_1 は T_e に逆比例するから，

$$\tau_1 T_e = \kappa \quad (2)$$

である。ここで， κ はコリンハ (Korringa) 定数であり，温度に依存しない。コリンハの

関係式[5]は

$$\frac{d}{dT} \left(\frac{1}{T_n} \right) = \frac{1}{\tau_1} \left(\frac{1}{T_n} - \frac{1}{T_e} \right)$$

である。または、式(2)を考慮して

$$\frac{dT_n}{dt} = \frac{T_n}{\kappa} (T_e - T_n)$$

となる。

核スピン系と伝導電子系間の熱流方程式は次のように書ける。

$$\dot{Q}_1 = \frac{C_n T_n}{\kappa} (T_e - T_n). \quad (3)$$

この式(3)に、磁場中での核スピン系の熱容量を代入すると、次の式が得られる。

$$\dot{Q}_1 = \frac{K(B^2 + B_{int}^2)}{\kappa \mu_0 T_n^2} (T_e - T_n). \quad (4)$$

この式は電子系から核スピン系への熱の移動速度を表わす。すなわち、式(4)は核スピン系の冷却パワーをあらわす。

冷媒の格子（温度は T_e に等しい）と液体ヘリウムとの間の温度差はカピッツァ抵抗 R_K で決定され、そのときの熱流速度は

$$\dot{Q}_2 = \frac{A(T_{He} - T_e)}{R_K}$$

である。ここで A は熱接触面積を表わす。消磁速度 dB/dT で断熱消磁しているときの核スピン系による熱吸収速度は、核スピン系の温度を T_n として次式で計算できる。

$$\dot{q} = -C_n T_n \frac{B}{B^2 - B_{int}^2} \cdot \frac{dB}{dT} .$$

図1に示すように、電子系への熱流入 \dot{Q}_e とヘリウム系への熱流入 \dot{Q}_{He} を考慮に入れると、熱平衡状態に近づく過程のダイナミクスは、次の連立方程式で表わされる。

$$C_n \frac{dT_n}{dt} = \dot{Q}_1 - \dot{q} , \quad (5)$$

$$C_e \frac{dT_e}{dt} = \dot{Q}_e - \dot{Q}_1 + \dot{Q}_2 , \quad (6)$$

$$C_{He} \frac{dT_{He}}{dt} = \dot{Q}_n - \dot{Q}_{He} . \quad (7)$$

ある時刻 t_0 での温度 T_n, T_e, T_{He} が分かっているならば、それらの時間変化は式(5)~(7)を数値的に解くことで求められる[6, 7, 8].

ある磁場 B_f まで断熱消磁した後で平衡状態に達した電子系の最終温度は、熱流入 \dot{Q}_e があるとき（ヘリウム試料がないとする）、式(4)で決定され次のようになる。

$$(T_e)_f = (T_n)_f \left(1 + \frac{\mu_0 \kappa \dot{Q}_e}{K(B^2 + B_{int}^2)} \right) . \quad (8)$$

式(8)によれば、温度 $(T_e)_f$ は B_f に対して単調な依存性を示すのではなく、 B_f の最適値は $d(T_e)_f/dB_f=0$ から求まる。それは熱流入に依存して次の式で表わされる。

$$(B_f)_{opt} = \left(\frac{\mu_0 \kappa \dot{Q}_e}{k} - B_{int}^2 \right)^{1/2}. \quad (9)$$

そのとき電子系の最低温度 (B_{int} は無視できる) は次のようになる。

$$(T_e)_{min} = 2 \frac{T_n}{B_i} B_f = 2(T_n)_f.$$

熱流入 \dot{Q} によって核スピン温度が最終温度 $(T_e)_f$ からある温度 T_n まで上昇するのに要する時間は、次の式で表わされる。

$$\Delta t = \frac{K(B_f^2 + B_{int}^2)}{\dot{Q}\mu_0} \left(\frac{1}{(T_n)_f} - \frac{1}{T_n} \right). \quad (10)$$

式(10)から分かるように、最低温度を低くし実験のための時間を長くするには、 $B_f \neq 0$ にするべきである。

3 核磁気物質の性質

核断熱消磁に用いられる物質には次のようなことが要求される。

1. 金属のスピン-格子緩和時間は絶縁体のそれよりも低温でずっと小さいので、材料は金属であること。それにより格子が速く冷え磁化熱が速やかに取り除かれる。
2. 式(3)から分かるように、材料のコリンハ定数 κ は小さくなければならない。なぜなら、 κ が小さければ核システムの冷却パワーが大きくなり、 B_f が小さくなるからである(式(8)参照)。
3. 式(3), (8), (9)から分かるように、キュリー定数は大きくななければならない。これは冷却パワーを増加しウォーミングアップ時間を長くするのに必要である。
4. 温度勾配を少なくするために、熱伝導度は大きくななければならない。
5. 材料の金属は超伝導状態になってはならない。なぜならスピン-格子緩和時間が大きくなり熱伝導が悪くなるからである。
6. 冶金的性質が優れており、また機械的加工が容易であること。

核断熱消磁に用いることができる候補として、幾つかの金属の物理的性質を表1に示す。また、これらの物質の冷媒としての可能性を表2に示す。ここには、 $T_e/T_n=1.1$ のときの核スピンの冷却パワー \dot{Q} 、最終温度 T_f 、 T_f を10%増加させるのに要する熱量 \tilde{q} 、が計算されている。最終磁場 B_f はニオブとインジウムを除いて0.15 Tに設定されている。

表 1 核断熱消磁材料の性質 [1, 11]

材料	単位体積あたりのキュリー定数 (μK)	コリンハ定数 (Ks)	核スピン相互作用の有効磁場 (T)	臨界磁場 (T)
アルミニウム	0.87	1.8	—	0.0105
バナジウム	1.91	0.8	—	0.142
ガリウム	0.59	1.01	0.14	0.0051
インジウム	1.11	0.086	0.31	0.0293
銅	0.57	1.1	0.0031	—
ニオブ	1.99	0.19	—	0.198
錫	0.015	0.030	—	0.0309
プラチナ	0.019	0.030	—	—
タリウム	0.21	0.006	—	0.0171

表 2 核断熱消磁材料の比較(体積 100 cm^3 あたりの計算値. $B_i = 6 \text{ T}$, $T_i = 10 \text{ mK}$) [1]

材料	B_f (T)	\dot{Q} (nW)	T_f (mK)	\hat{q} (μJ)
アルミニウム	0.15	86	0.25	560
バナジウム	0.15	420	0.25	1,250
インジウム	0.03	6,400	~0.5	1,200
銅	0.15	92	0.25	370
ニオブ	0.25	5,200	0.42	2,150
タリウム	0.15	6,300	0.25	140

表 1 と表 2 に与えられたデータを見ると, すべての要求を同時に満足する金属はないことが分かる. バナジウム, タリウム, ニオブ, インジウム, によってよい結果が得られるかもしれないが, それぞれ欠点をもっている. 純金属の核断熱消磁実験は, これまでに銅およびインジウム[9], あるいはガリウム[10]で行なわれている. しかし現在最も一般的な材料は銅である. それは電子による熱伝導度が高く, 機械加工しやすく, 入手が簡単だからである. これに関連して冷媒として用いるときに役に立つデータを挙げておく. 自然界には安定な同位体 ^{63}Cu と ^{65}Cu がそれぞれ比率 69%と 31%で存在する. 両方とも核スピン $I = 3/2$ をもち, 同位体の比率を考慮に入れた平均の g 因子は $g_n = 1.5$ である. ダイポール相互作用による有効内部磁場は, $B_{int} = 0.3 \text{ mT}$, $K = 4.0 \times 10^{-12} \text{ Km}^3/\text{mol}$ である.

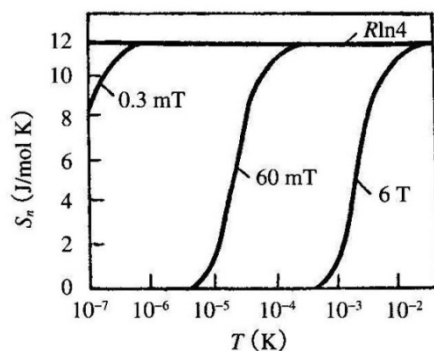


図 2 磁場中での銅の核スピントロピー [11]

核断熱消磁に用いられる通常の温度と磁場の範囲での、銅のエントロピーダイアグラムを図 2 に示す。核スピンの場合、エントロピーの T と B 依存性は次の式で表わされる。

$$\frac{S_n}{R} = \ln 4 - \frac{3.2 \times 10^{-14}}{T^2} - 3.4 \times 10^{-7} \left(\frac{B}{T} \right)^2. \quad (11)$$

高温では電子系からのエントロピーへの寄与がある。このエントロピーは $S_e/R = 8.4 \times 10^{-5} T$ [11]であり、 $T < 1$ K では格子の寄与は無視できる。式(11)および図 2 から分かるように、通常の実験条件では銅のエントロピー減少量は小さい。例えば、 $T_i = 10$ mK, $B_i = 6$ T では、エントロピーの減少量は初期値から約 5% にすぎない。

次号に続く

参考文献

1. O.V. Lounasmaa: Experimental Principles and Methods Below 1K (Academic Press, London and New York, 1974).
2. Gorter C.J., Remark in "Magnetische Methode zur Erzeugung tiefster Temperaturen", Phys. Z., 1934, **35**, No. 23, P. 928.
3. Kurti N., Simon F.E., Experiments at very low temperatures obtained by magnetic method. I. Production of the low temperatures, Proc. Roy. Soc. A., 1935, **149**, No. 866, P. 152-163.
4. Kurti N., Robinson F.N., Simon F., *et al.*, Nuclear cooling, Nature 1956, 178, No. 4531, P. 450-453.
5. Korringa J., Nuclear magnetic relaxation and resonance line shift in metals, Physica, 1950, **16**, No. 7-8, P. 601-609.
6. Dow R.C.M., Guenault A.M., Pickett G.R., Copper powder nuclear demagnetization – a feasibility study, J. Low Temp. Phys., 1982, **47**, No. 5/6, P. 477-490.
7. Hensel P., The nuclear refrigeration of copper, J. Low Temp. Phys. 1973, **13**, No. 3/4, P. 371-382.
8. Shen S.Y., Ketterson J.B., Halperin W.P., Refrigeration by adiabatic demagnetization nuclear spins, J. Low Temp. Phys., 1978, **31**, No. 1/2, P. 193-222.
9. Sumko O.G., Nuclear cooling using copper and indium, J. Low Temp. Phys., 1969, **1**, No. 5, P. 451-467.
10. Angerer U., Eska G., Nuclear demagnetization in thallium, Cryogenics, 1984, **24**, No. 10, P. 515-512.
11. Betts D.S., Refrigeration and thermometry below one Kelvin., London: Chatto & Windus Ltd., 1976.