

# エアロジェル中の液体ヘリウム3の超流動

メタデータ	言語: Japanese 出版者: 公開日: 2018-12-20 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: メールアドレス: 所属:
URL	<a href="https://doi.org/10.24517/00052952">https://doi.org/10.24517/00052952</a>

This work is licensed under a Creative Commons Attribution-NonCommercial-ShareAlike 3.0 International License.



KAKEN
2000
107

金沢大学

# エアロジェル中の液体ヘリウム3の 超流動

(研究課題番号 10640335)

平成10年度～平成12年度科学研究費補助金  
(基盤研究(C)(2)) 研究成果報告書

平成14年3月

研究代表者 松本宏一  
(金沢大学 理学部)

金沢大学附属図書館



8011-05239-X

## はしがき

この報告書は平成10年度から平成12年度にわたって科学研究補助金によって行われた研究成果をまとめたものである。

研究種目 基盤研究C(2)  
研究課題番号 10640335  
研究課題名 エアロジェル中の液体ヘリウム3の超流動

### 研究組織

研究代表者 金沢大学 理学部 助教授 松本宏一  
研究分担者 東京工業大学 理工学研究科 教授 奥田雄一

### 研究経費

平成10年度	2,600千円
平成11年度	500千円
平成12年度	300千円
計	3,400千円

### 研究発表

#### 論文

K. Matsumoto, O. Arai, Y. Okuda and K. Tajiri  
Sound Velocity of Liquid  $^4\text{He}$  in aerogel  
Physica B **284-288** (2000) p. 101-102

#### 口頭発表

##### 1. Koichi Matsumoto

Sound Velocity of Liquid  $^4\text{He}$  in aerogel  
22nd International Low Temperature Conference  
August 10, 1999

##### 2. 松本宏一

エアロジェル中の液体ヘリウム4の音速  
日本物理学会 第4会秋の分科会  
1999年9月24日

## 研究成果の概要

### 1. 研究目的

$^3\text{He}$ の超流動は非S波（P波-3重項）である。この非等方ペアリングを理解するために発展した概念は重いフェルミ粒子系、酸化物超伝導体などの理解に重要な役割を果たしてきた。 $^3\text{He}$ は通常物質に比べて極めて純粋である。しかし、逆に純粋であることが不純物状態の研究を不可能にしていた。最近の研究で、エアロジェルを用いることで、クエンチされた乱れの中での液体 $^3\text{He}$ の超流動の研究が可能になった。

エアロジェルはシリコンと酸素の鎖状の高分子が編み目のようにネットワークを作っている物質で、さらにそのネットワークがフラクタルな不規則構造を持っている。そして、そのネットワークの特徴的な長さが液体 $^3\text{He}$ のクーパー対の相関距離と近いので、エアロジェルでは液体 $^3\text{He}$ の中にシリカの鎖状の高分子があたかも不純物のように入っている系と考えられる。これにより、強く関連したフェルミ流体中の不純物効果を研究することが可能になる。

エアロジェル中の液体 $^3\text{He}$ の超流動は新しい研究対象で、その特徴が広く知られてはいない。最近の研究によって解明された現象については研究代表者の松本による報告（参考資料1）に示す。その要点として次のようなことがわかってきた。

- ・ P波の超流動は乱れによって簡単に壊されると考えられてきたが、転移温度は抑制されるが超流動状態がエアロジェル中でも存在する。エアロジェルの占める体積はわずか1.8%と非常に小さいが、相図はバルクの $^3\text{He}$ と全く異なっている。
- ・ 同密度のエアロジェルにおいても相図が異なり、シリカの内部構造が超流動コヒーレンスに及ぼす効果に違いがある。
- ・ 絶対零度において、ヘリウムの密度変化によって起こる常流動-超流動転移が存在する。これは量子相転移である。

以上の事柄を踏まえ、本研究の研究目的を次の2つに設定した。

#### エアロジェルの構造相関と相図、量子相転移の詳細

エアロジェルのシリカクラスターの大きさや、シリカのフラクタル相関の超流動転移温度との関係を調べる。具体的には、条件を変えたエアロジェルを合成し、その中での $^3\text{He}$ の超流動転移を調べる。具体的には、超音波の実験を行い、臨界点近傍の超流動密度などについて測定する。これにより、量子相転移の詳細を転移点近傍での振舞いや、量子揺らぎが支配的となる領域の大きさなどの観点から明らかにする。

#### エアロジェル中の液体 $^3\text{He}$ の超流動状態

$^3\text{He}$ の超流動はP波であることから、A相・B相などの状態をとる。しかし、エアロジェル中の液体 $^3\text{He}$ の超流動状態はどのような状態であるか、未だに確立されていない。音波のモードの一つである第ゼロ音波は、超流動体の集団励起と結合して、超流動のエネルギーギャップなど秩序状態についての重要な情報を与える。そこで、超音波の実験により、エアロジェルの中での $^3\text{He}$ の超流動状態を解明する。

## 2. 研究成果

### 2-1. エアロジェルの合成

シリカエアロジェルの合成を行った。一般的な合成法であるテトラメトキシシランをメタノールで希釈し、塩基性触媒を用い加水分解重合させる方法で作製した。できた湿潤ゲルを超臨界乾燥する事でエアロジェルを作製した。我々の合成では、空孔率94%程度のエアロジェルの合成に成功した。しかし、ヘリウム3の超流動を研究するには十分に空孔率が上がってはいない。その主な原因は乾燥時の収縮であり、シリカのネットワークの骨格の強化が収縮率減少に必要であることが明らかになった。現在も空孔率をより高めるテトラメトキシシランの2~3重体から合成を出発する2段階合成法を用いることが考えられる。

超音波の実験に用いられる試料は名古屋工業試験場の田尻耕治氏の合成によるエアロジェルを用いた。

### 2-2. 超音波測定システムの作製

研究の初年度に第1及び第0音波の測定装置を作製した。当時の所属機関であった東京工業大学の超音波パルス発生装置を利用し、精密な音速測定を可能にする直交検波を行うための超音波レシーバを備品費より購入して超音波精密測定装置を作製した。また、データ蓄積、解析のためにパーソナルコンピュータを購入した。

つぎに、電気信号と超音波の変換を行うトランスデューサを購入、試料セルを作製した。これらの超音波測定装置の性能評価とエアロジェル中の音波の伝播の概要を理解するために、液体 $^4\text{He}$ 中に実際に合成したエアロジェルを浸し10MHzの周波数において超音波測定の実験を行った。

この結果、作製した測定装置は超音波信号を観測する十分な感度を有することが、ここまでの実験で明らかになり、 $^3\text{He}$ を用いた実験のための基礎的なデータを得ることができた。

平成11年4月に研究代表者の松本は金沢大学に転任した。当初作製した測定システムには超音波パルス発生装置に東京工業大学の備品を利用していたため、金沢大学において新しい測定装置の製作が行われ測定系が構築された。

この装置の作成については参考資料2にその詳細を示す。

### 2-3. エアロジェル- $^4\text{He}$ 複合系の音波モードの観測

超音波測定装置の性能評価とエアロジェル中の音波の伝播の概要を理解するために、液体 $^4\text{He}$ 中に実際に合成したエアロジェルを浸し10MHzの周波数において超音波測定の実験を行った。

その結果、エアロジェル中の液体 $^4\text{He}$ を伝播する超音波は、エアロジェルによる散乱によりかなり大きな減衰を示すことが明らかになった。また、ヘリウム3の場合に見られるフォノンとロトンの散乱による吸収ピークはエアロジェル中では発見されなかった。重要な発見として、音波の伝播速度がエアロジェルの密度に大きく依存することが観測された。この系ではエアロジェルと液体ヘリウム3の両者が結合した音波のモードの存在が予想され、我々の実験では音波モードのうち速い音速を持つモードの観測に超流動と常流動の両相で成功した。この実験の詳細については参考資料2に示す。また、この研究の成果はPhysica Bに掲載された(論文1としてこの報告書に掲載)。

#### 2-4. 核断熱冷凍装置の製作

平成11年4月より、研究代表者の松本が東京工業大学より金沢大学に転任した。このため、液体 $^3\text{He}$ の超流動を実現するために必要な核断熱冷凍装置を金沢大学において新しく製作しなくてはならなかった。平成11～12年度とこれに取り組んできた結果、装置の基本的部分については完成を見た。さらに液体 $^3\text{He}$ の超流動転移温度である1mK以下の超低温に到達するように装置の調整が行われた。

核断熱冷凍装置の詳細については参考資料3に示す。

#### 3. 今後の研究の展開

研究成果の項において報告したように研究代表者の松本の転任に伴って研究計画が大きく変更されることになり、残念ながら当初の研究計画が必ずしも十分に達成されたとは言えない。しかしながら、液体 $^3\text{He}$ の超流動温度に到達する準備は整った。また、測定系についても十分な性能を有するものを整備することができた。極近い将来、当初に計画された実験に取りかかることができる。

液体 $^4\text{He}$ とエアロジェルの系における複合音波の研究は本研究から派生して行われた研究であるが、非常に興味深い結果を示しており、論文の査読者からも高く評価された。この課題についてもさらに研究を展開する。一部の結果については平成14年度中に論文として発表する予定である。

参考資料 2

超音波による液体ヘリウム<sup>4</sup>Heの超流動の研究と  
超音波測定系の製作について

## 第1章 序論

液体ヘリウムは、非常に特異な物質である。ヘリウムには、 $^4\text{He}$ と $^3\text{He}$ の同位体が存在して、そのどちらも絶対零度でも液相が存在し、ある圧力を加えなければ固体にならない。液体ヘリウムは、低温へ冷やすことにより、超流動と呼ばれる非常にユニークな液体へと変化する。超流動ヘリウムは、粘性を全く持たない成分を持ち、超流動フィルムや、スーパーリークといった、様々な現象を起こす。また、超流動ヘリウムは、通常の圧力波以外に、温度(エントロピー)の波、スーパーリーク中での圧力波など、いろいろな音波のモードが存在する。これらの音波は、超流動の本質を理解するうえで重要な手段となっている。

次に、Aerogelは、シリカ粒子が3次元的なネットワークを構成し、フラクタルな構造を持つ多孔質媒体である。また、半透明で非常に密度の低い固体である。液体ヘリウムに満たされたAerogelは、液体ヘリウムにとって不純物の効果があるといわれている。

本実験では、Aerogelという物質中での液体 $^4\text{He}$ の超音波測定をおこなった。これまでの、Aerogel中の $^4\text{He}$ の研究は、音波<sup>1)</sup>、比熱<sup>2)3)</sup>、中性子散乱<sup>4)5)</sup>などがおこなわれてきた。比熱の実験では、超流動転移温度の変化がみられた。また、音波の実験では、純粋な $^4\text{He}$ では見られなかった新たな音波のモードが発見された。しかし、音波の実験は、1.8K以上になると吸収が大きくなり、限られた温度でしか測定できなかった。

そこで、本実験では、10MHzの超音波を用いることで、超流動相だけでなく、常流動相も含めた、すべての温度領域での測定を試みた。



# 目次

第1章	序論	i
第2章	背景	1
2.1	超流動 $^4\text{He}$ の音響特性	1
2.1.1	2流体モデルと音波	1
2.1.2	吸収係数	3
2.2	Aerogel の特徴	5
2.3	Aerogel 中の超流動 $^4\text{He}$ の性質	7
2.3.1	音波の研究	7
2.3.2	比熱の研究	9
第3章	実験	10
3.1	Aerogel	10
3.2	低温の生成	11
3.2.1	$^3\text{He}$ クライオスタット	11
3.2.2	温度計と温度コントロール	11
3.3	超音波測定系	12
3.3.1	測定装置	12
3.3.2	サンプルセル	14
3.4	測定原理	16
3.4.1	飛行時間法	16
3.4.2	位相検波法	16
3.4.3	吸収係数	18
第4章	結果	19
4.1	$^4\text{He}$	19
4.2	$^4\text{He}$ in 92.6% Aerogel	26
4.3	$^4\text{He}$ in 94.0% Aerogel	30

第5章 考察	34
5.1 Aerogel 中での音速 . . . . .	34
5.1.1 常流動相 . . . . .	34
5.1.2 超流動相 . . . . .	35
5.2 超流動転移点 . . . . .	40
5.3 Aerogel 中での吸収 . . . . .	41
第6章 まとめ	43
付録 : Frequency Divider 及び Pulse Generator の作成	44
参考文献	48
謝辞	49

## 目 次

2.1	飽和蒸気圧下での液体 $^4\text{He}$ の第 1 音波の吸収係数 . . . . .	4
2.2	Aerogel の構造の模式図 . . . . .	6
2.3	Aerogel の構造 (写真) . . . . .	6
2.4	第 1 音波と第 4 音波の中間の音波 . . . . .	8
2.5	第 2 音波に類似した音波 . . . . .	8
2.6	Aerogel 中での $^4\text{He}$ の比熱 . . . . .	9
3.1	超音波測定系のブロックダイアグラム . . . . .	13
3.2	サンプルセルの概略図 . . . . .	15
4.1	液体 $^4\text{He}$ の音速 (飛行時間法) . . . . .	21
4.2	位相変化 . . . . .	22
4.3	$^4\text{He}$ の縦波音波の音速 (位相検波法) . . . . .	23
4.4	$^4\text{He}$ の吸収 . . . . .	24
4.5	$^4\text{He}$ の吸収係数 . . . . .	25
4.6	Aerogel(Porosity 92.6%) 中の液体 $^4\text{He}$ の音速 (飛行時間法) . . . . .	27
4.7	Aerogel(Porosity 92.6%) 中の液体 $^4\text{He}$ の音速 (位相検波法) . . . . .	28
4.8	Aerogel(Porosity 92.6%) 中の液体 $^4\text{He}$ の吸収係数 . . . . .	29
4.9	Aerogel(Porosity 94.0%) 中の液体 $^4\text{He}$ の音速 (飛行時間法) . . . . .	31
4.10	Aerogel(Porosity 94.0%) 中の液体 $^4\text{He}$ の音速 (位相検波法) . . . . .	32
4.11	Aerogel(Porosity 94.0%) 中の液体 $^4\text{He}$ の吸収係数 . . . . .	33
5.1	$C_a=255\text{m/s}(C_a > C_4  _{T \rightarrow 0})$ のときの Maynard et al のモデル . . . . .	37
5.2	$C_a=215\text{m/s}(C_a < C_4  _{T \rightarrow 0})$ のときの Maynard et al のモデル . . . . .	37
5.3	Aerogel(Porosity 92.6%) 中の液体 $^4\text{He}$ の音速 fitting . . . . .	38
5.4	Aerogel(Porosity 94.0%) 中の液体 $^4\text{He}$ の音速 fitting . . . . .	39

## 第2章 背景

### 2.1 超流動<sup>4</sup>Heの音響特性

#### 2.1.1 2流体モデルと音波

通常の液体では、縦波(圧力波)しか存在しないのに対し、超流動<sup>4</sup>Heでは、これに加えてさまざまな音波のモードが存在する。それらは、超流動の本質を理解するうえで有力な手段であり、物性物理を議論するうえで重要なものとなっている。

2流体モデルでは、

『超流動ヘリウムは超流動状態をとっている成分(超流動成分)と常流動状態の成分(常流動成分)との混合物である』

と仮定する。そして、

超流動成分： 密度 =  $\rho_s$  , 粘性係数 = 0 , エントロピー = 0

常流動成分： 密度 =  $\rho_n$  , 粘性係数 = 0 , エントロピー = 0

と考える。

以下、2流体モデルにおける基本方程式を示す。

液体全体の密度

$$\rho = \rho_s + \rho_n \quad (2.1)$$

単位体積当りの運動量  $j$

$$j = \rho_s v_s + \rho_n v_n \quad (2.2)$$

$j$  に対する連続の式

$$\operatorname{div} j = -\frac{\partial \rho}{\partial t} \quad (2.3)$$

$j$  の時間変化によるオイラーの式

$$\frac{\partial j}{\partial t} = -\operatorname{grad} P \quad (2.4)$$

単位エントロピー  $s$  に対する連続の式

$$\frac{\partial \rho s}{\partial t} = -\text{div}(\rho s v_n) \quad (2.5)$$

$j = \rho_s v_s$  に対するオイラーの式

$$\rho_s \frac{\partial v_s}{\partial t} = -\frac{\rho_s}{\rho} \text{grad} P + \rho_s s \text{grad} T \quad (2.6)$$

式(2.6)に対応する  $v_n$  の式

$$\rho_n \frac{\partial v_n}{\partial t} = -\frac{\rho_n}{\rho} \text{grad} P - \rho_s s \text{grad} T \quad (2.7)$$

また、超流動を伝わる音波として、以下のものなどが存在する。

第1音波 通常の縦波(圧力波)

超流動成分と常流動成分が同じ位相で動くことで圧力波となる。

$$C_1^2 = \left( \frac{\partial P}{\partial \rho} \right)_T \quad (2.8)$$

第2音波 温度の(エントロピー)の波

超流動成分と常流動成分が逆の位相で動くことでエントロピーの波が伝わる。

$$C_2^2 = S^2 \left( \frac{T \rho_s}{C_p \rho_n} \right) \quad (2.9)$$

第4音波 スーパーリーク中の圧力波

多孔質媒体に超流動ヘリウムを入れ、その中を伝わる波である。常流動成分が粘性により媒体に結合されて動くことができず、超流動成分のみを通して音波が伝わる。

$$C_4^2 = \frac{\rho_s}{\rho} C_1^2 + \frac{\rho_n}{\rho} C_2^2 \quad (2.10)$$

## 2.1.2 吸収係数

超流動<sup>4</sup>Heの第1音波の吸収係数は、周波数にも依るが、温度とともに増加し、約1Kに大きな緩和ロスのピークをもつ。さらに超流動転移点付近で顕著なピークをもつ(図2.1)。前者は、音波が複数のフォノンやロトンと相互作用することにより生じる複雑なものである。後者は、超流動と常流動の2次相転移に伴って、<sup>4</sup>Heの系にある種の不安定性(臨界揺動)が生じ、これと音波がカップルするため起こるロスである。

### T > T<sub>λ</sub> のとき

常流動状態のとき、通常の流体と同じで、ストークス-キルヒホッフの関係より

$$\alpha = \frac{\omega^2}{2\rho v^3} \left[ \frac{4}{3}\eta + \frac{C_p - C_v}{C_v} \cdot \frac{\chi T}{C_p} \right] \quad (2.11)$$

で与えられる。第1項は、粘性(粘性係数 $\eta$ )があるための緩和ロス $\alpha_\eta$ を表し、第2項は、熱拡散率 $\frac{\chi T}{C_p}$ が有限なために、圧力波によって生じる局所的な温度差を埋め合わせようとして流れる熱によるロス $\alpha_\kappa$ を表している。

### T < 0.6K のとき

このとき吸収係数 $\alpha$ の振る舞いは、飽和蒸気圧のとき、

$$\alpha = A\omega T^4 \quad (2.12)$$

をほぼ満たしている。ここで、 $\omega$ は音波の角周波数、 $T$ は温度、 $A$ は定数である。この $\omega$ と $T$ の依存性は、固体における3フォノン散乱過程とまったく同じである。音波の吸収は、音波のフォノンが<sup>4</sup>He中に熱的に励起されたフォノンと結合して別のフォノンに変わる過程で生じる。

### 1K 付近

温度が次第に上昇すると、フォノンの数は  $T^4$  で増加し、一方ロトンが励起されて、ロトンの数が温度に対し指数関数的に増加する。従って、温度が 0.6K を越えると、超流動  $^4\text{He}$  における素励起間の相互作用がかなり複雑になる。その中でもっとも重要になるのがフォノン・ロトン過程となる。

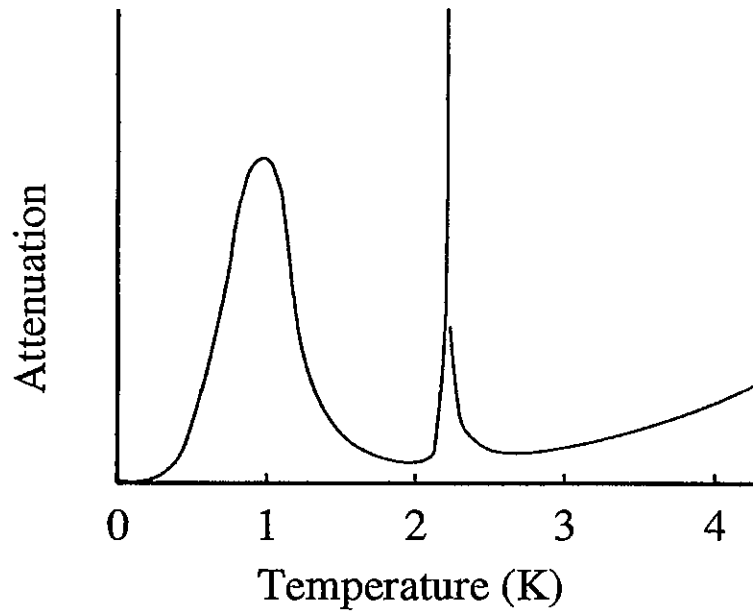


図 2.1: 飽和蒸気圧下での液体  $^4\text{He}$  の第 1 音波の吸収係数

## 2.2 Aerogelの特徴

Aerogelは、多孔性の固体で、シリカ粒子( $\text{SiO}_2$ )<sub>n</sub>が3次元のネットワークを構成している。図2.2、図2.3にその構造を示す<sup>6)</sup>。Aerogelは、空孔率 $p$ が非常に大きく、密度 $\rho$ が非常に小さい。空孔率は、次の式で求められる。

$$p = \left(1 - \frac{\rho}{\rho_{\text{silica}}}\right) \times 100 \quad (\%) \quad (2.13)$$

ここで、 $\rho_{\text{silica}}$ はシリカの密度で、 $\rho_{\text{silica}} = 2.19 \text{ (g/cm}^3\text{)}$ である。空孔率が98%のAerogelでは、シリカ粒子の平均直径は $\sim 30 \text{ \AA}$ 、シリカ間の平均距離は $\sim 200 \text{ \AA}$ であるといわれている。

また、一般的な多孔質媒体の場合、堅く機械的に動くことができず、液体 $^4\text{He}$ の常流動成分を固定してしまうのに対して、Aerogelは、柔らかく、機械的、熱的勾配により常流動成分と共に動くことができといわれている。



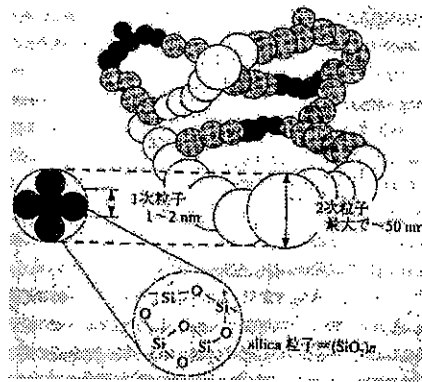


図 2.2: Aerogel の構造の模式図

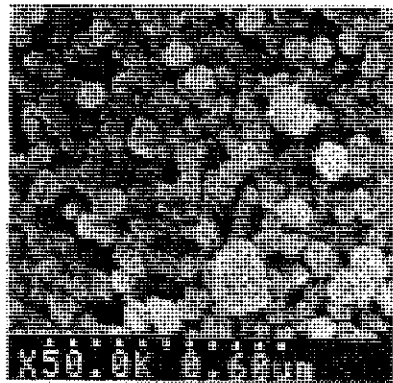


図 2.3: Aerogel の構造 (写真)  
走査型電子顕微鏡による Aerogel 表面の写真  
( $\times 50,000$ :写真の下の点線が 600nm に相当する)

## 2.3 Aerogel中の超流動<sup>4</sup>Heの性質

### 2.3.1 音波の研究

J. D. Maynard et al<sup>1)</sup> は、Aerogel中での超流動<sup>4</sup>Heの実験を行い、純粋な超流動<sup>4</sup>Heには見られない2つの新しい音波のモードを発見した。1つ目のモードは、常流動成分が超流動成分とともに圧力波として動くことにより、第1音波と第4音波の中間の音波のモードになる。もう一方は、Aerogelと結びついた常流動成分が超流動成分と反対の位相に動くことにより、第2音波に類似したモードになる。

first-fourth-sound mode 圧力波  
second-sound-like mode 温度の波

実験はそれぞれ周波数、数十kHz、数百Hzの音波を入れて、その共鳴周波数を測定する方法が用いられた。結果は、図2.4、図2.5に示す。first-fourth-sound modeは、1.8K以上で信号が弱くなり測定が困難であった。

2流体モデルの常流動成分の運動方程式2.7を変形させることで、常流動とAerogelの運動に関する方程式を得る。右辺を、Aerogelに起因する常流動の慣性から、 $\rho_n$ を $\rho_n + \rho_a$ として、右辺に、Aerogelによる特別な復元力の項 $-\text{grad } P_a$ を加えることで説明できる。

$$(\rho_n + \rho_s) \frac{\partial v_n}{\partial t} = -\frac{\rho_n}{\rho} \text{grad } P - \text{grad } P_a - \rho_s S \text{grad } T \quad (2.14)$$

ここで $P_a$ はAerogel中での音速 $C_a$ に関する。

$$C_a^2 = \frac{\partial P_a}{\partial \rho_a} \quad (2.15)$$

Aerogelについて、質量保存の関係から、

$$\frac{\partial \rho_a}{\partial t} + \text{div}(\rho_a v_n) = 0 \quad (2.16)$$

以上より、音速 $C$ に関する永年方程式を得る。

$$C^4 - C^2(C_1^2 + C_2^2) + C_1^2 C_2^2 + \frac{\rho_a}{\rho_n} (C^2 - C_a^2)(C^2 - C_4^2) = 0 \quad (2.17)$$

これより、速い波と遅い波の2種類の波が導かれる。ここで導かれる速い波が、第1音波と第4音波の中間の音波 $C_{14}$ となり、遅い波が、第2音波に類似した音波 $C_{2a}$ となる。

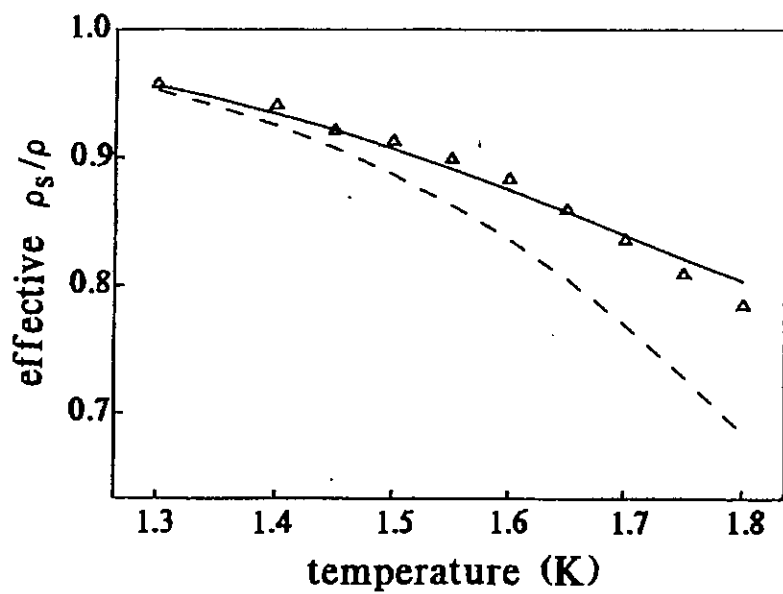


図 2.4: 第1音波と第4音波の中間の音波

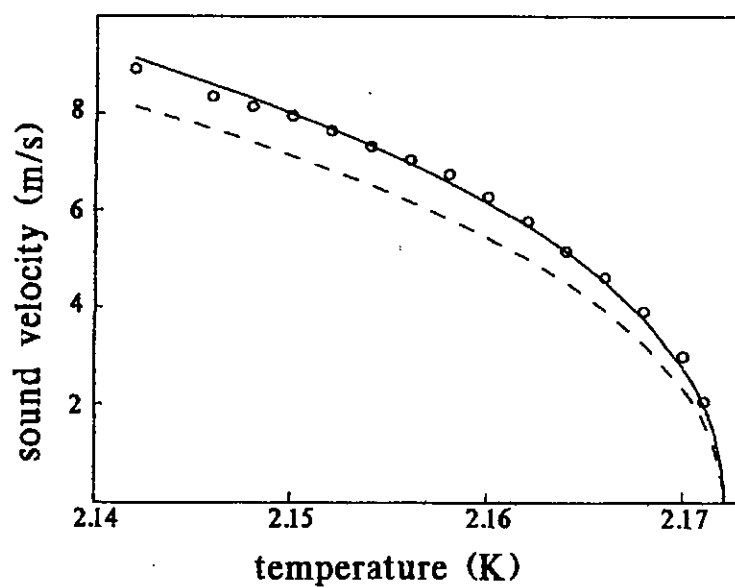


図 2.5: 第2音波に類似した音波

### 2.3.2 比熱の研究

Moses H. W. Chan et al<sup>2)</sup> は、Aerogel 中で超流動  $^4\text{He}$  の比熱の測定を行なった。結果を図 2.6 に示す。Aerogel の空孔率が大きくなるにしたがい、超流動転移点が低温側にシフトしていくことを発見した。

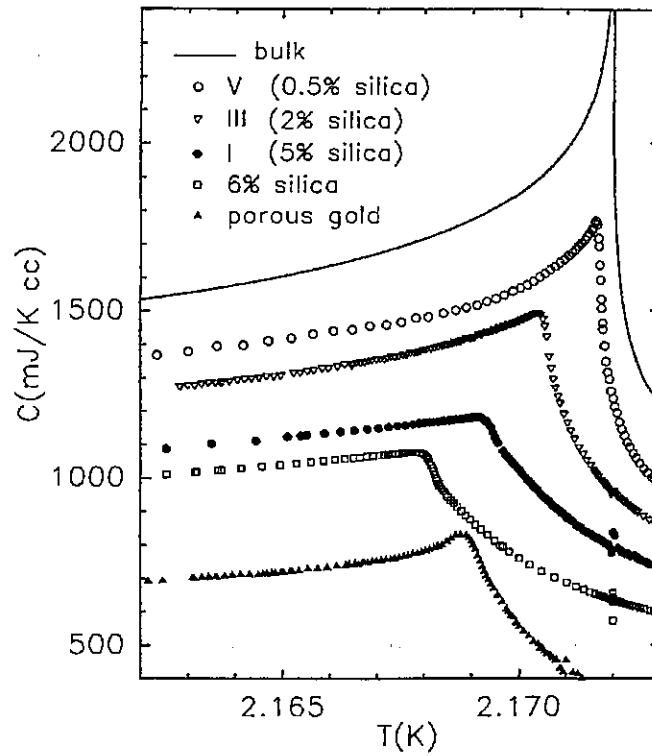


図 2.6: Aerogel 中での  $^4\text{He}$  の比熱

## 第3章 実験

### 3.1 Aerogel

今回、Aerogelは、空孔率が92.6%と94.0%の2種類用いた。それぞれ下のような条件の下で合成した。

92.6%	プロピルアルコール超臨界乾燥	10倍希釈
94.0%	エチルアルコール超臨界乾燥	15倍希釈

作成は、名古屋工業技術研究所の田尻耕治さんにお願ひしました。

Aerogelは吸湿性があるため、吸着水を除去する必要がある。そのため、まず加工する前に、80℃程度に加熱した状態で10時間以上真空引きをする。

また、Aerogelをサンプルセルにセットするうえで次のようなことを行う。

1. 吸着水を除去する
2. 重さ、大きさを量り、空孔率を求める
3. 筒状のナイフエッジでφ7の円柱状にカットする
4. スペーサーにAerogelをはめる
5. 細かい紙やすりでゆっくり削り、スペーサーと同じ厚さにする
6. サンプルセルにセットする

Aerogelを扱うとき、吸湿性であるため、また、非常にもろく崩れてしまう可能性があるため、細心の注意を払うこと。また、削粉を肺に吸い込まないように、マスクをつけて行ったほうが良い。

## 3.2 低温の生成

### 3.2.1 $^3\text{He}$ クライオスタット

我々は活性炭吸着ポンプを用いた  $^3\text{He}$  クライオスタットを用いた。0.5K 以下まで冷却することができる。1 ショットタイプであるため、冷凍機本体のみでは 12 時間ほど最低温度を保持できるが、サンプルセルのある状態では、 $^3\text{He}$  pot がおよそ 1 時間半で涸れてしまう。冷凍能力の測定は行っていないが、熱リークが大きいのかかもしれない。

$^3\text{He}$  pot にはサンプルセルを接続してある。また、 $^4\text{He}$  をセルに導入するキャピラリーが、1K pot にアンカーされている。また、超音波用の同軸ケーブルは一度 1K pot にアンカーされた後、 $^3\text{He}$  pot にアンカーされている。

### 3.2.2 温度計と温度コントロール

サンプルセルの温度計は、Lake Shore の較正済みの Cernox Resister を用いた。この温度計の測定領域は、0.3~100K である。bulk  $^4\text{He}$ 、及び、空孔率 92.6% の測定するとき、定電流電源とデジタルボルトメータを用い直流四端子法で測定した。空孔率 94.0% のとき、温度コントローラ (CONDUCTUS LTC-20) を用いて交流四端子法で測定した。この温度コントローラには、ヒーターの PID コントローラが内蔵されており、これを用いて温度調節を行う。 $^3\text{He}$  pot の温度調節用に、およそ  $300\Omega$  のマンガニン線のヒーターを付けてある。

### 3.3 超音波測定系

#### 3.3.1 測定装置

本実験で用いた超音波測定系のブロックダイアグラムを図3.1に示す。周波数およそ10MHzの超音波をパルス状に入射するパルスエコー法を用いた。測定は位相検波法で行う。まず、シンセサイザーから発信された連続波が、ゲートを通ることで、パルス状に切り出される。このとき常に同じ位相で切り出される必要がある。そのため、シンセサイザーから分周した信号でゲートのコントロールを行う。次に、切り出された信号は、Attenuatorで適度な信号レベルに調節され、サンプルに入る。サンプルを通過した信号は、アンプで増幅され、レシーバーで参照信号と掛け合わされる(3.4測定原理参照)。その後、ローパスフィルターを通り、X、Y成分としてオシロスコープで観測される。デジタルオシロスコープでアベレージを掛けたものをパソコンで取り込み解析する。

それぞれの測定に用いた条件を次に示す。

	<sup>4</sup> He	92.6%	94.0% 1回目	94.0% 2回目
Synthesizer (dBm)	±0	±0	+3	+3
Attenuator (dB)	-20	-0	-10,-20	-0,-10
Pre Amp (dB)	+25	+25	+46	+46
PSD (dB)	+24	+34	+14	±0

	会社	規格
Synthesizer	HP	3336C
Power Splitter	HP	
Attenuator	HP	
Pre Amp (+25dB)	HP	8447D
Pre Amp (+46dB)	NF electronic Ins.	SA-230F5
PSD	Thamway	N320-8056A

Synthesizerは、周波数安定度が重要で、位相を安定させるためには、10MHzで数Hzオーダーの安定度が必要である。Pre Ampは、92.6%のとき、HPの+25dBのものを用いていたが、受信した信号が小さくバックグラウンドのノイズが大きかったため、94.0%のときに、低ノイズでGainの大きいNFの+46dBのものに交換した。また、Frequency DividerとPulse Generatorは自作した(付録1)。

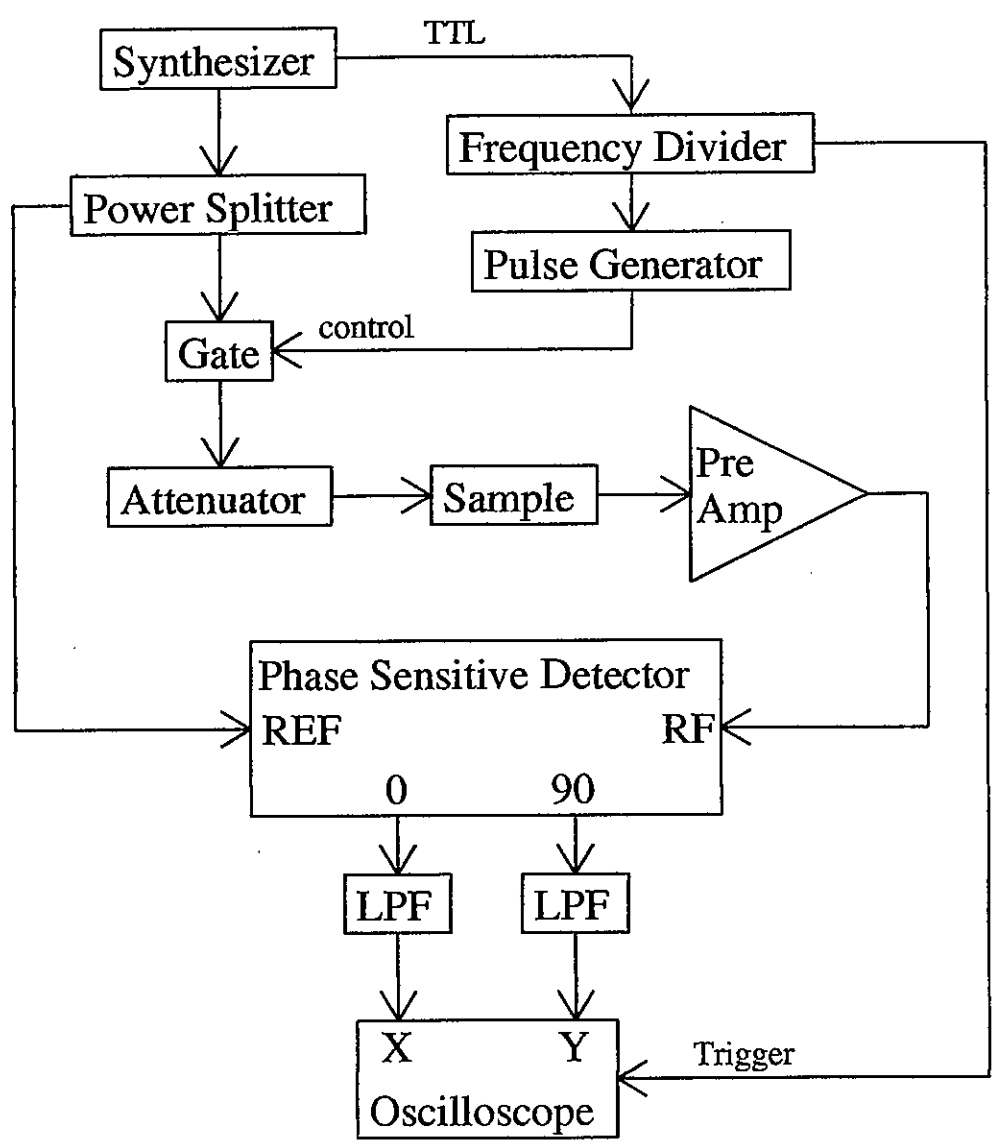


図 3.1: 超音波測定系のブロックダイアグラム



### 3.3.2 サンプルセル

#### サンプルセル

実験に用いたサンプルセルの概略図を図 3.2 に示す。セルの大部分を OFC で作ってある。セル本体と  $^4\text{He}$  との熱伝導をよくするために、銀のシンターを底蓋に詰めてある (体積:  $0.1\text{cm}^3$  密度: 65%)。セル内の体積は、およそ  $5.4\text{cm}^3$  あるが、液化  $^4\text{He}$  を  $1.8\text{cm}^3$  コンデンスするだけで、サンプル両端のトランスデューサが  $^4\text{He}$  に十分満たされるようにしてある。Aerogel は、スペーサーにはめられトランスデューサが平行に取り付けられるようにしてある。音波は、トランスデューサの一方から打ち出され、もう一方で、受信できるようにしてある。従って、スペーサーの長さが音波の伝播距離となる。スペーサーの長さ  $L$  は、

bulk $^4\text{He}$	4.070mm
92.6% Aerogel	4.070mm
94.0% Aerogel	2.974mm

である。内径はすべて 7.0mm である。

トランスデューサは、およそ 10MHz の周波数で感度の良い  $\text{LiNbO}_3$  を用いた。直径 10mm、アクティブエリア 4mm である。本実験では、10MHz 周辺で周波数を調節して、最も大きな信号が得られた 9.71MHz を用いて測定する。

#### $^4\text{He}$ Gas Handling System

サンプルセルに  $^4\text{He}$  をコンデンスするとき、及び、サンプルセルの圧力モニターに用いる。10l のタンクにおよそ 1atm の純粋な  $^4\text{He}$  ガスを入れておく。液体  $\text{N}_2$  trap を用いることでサンプルセルに水等の不純物が流れ込まないようにしてある。液体  $\text{N}_2$  trap は 1/8 インチ銅管、およそ 2.5m からなる。また、コンデンスする上で、キャピラリーを 1K pot にしっかり熱アンカーしておく必要がある。この装置でのコンデンスのスピードは、GHS が 0.8atm、1K pot が 2K のとき、およそ  $0.3\text{cm}^3/\text{h}$  である。

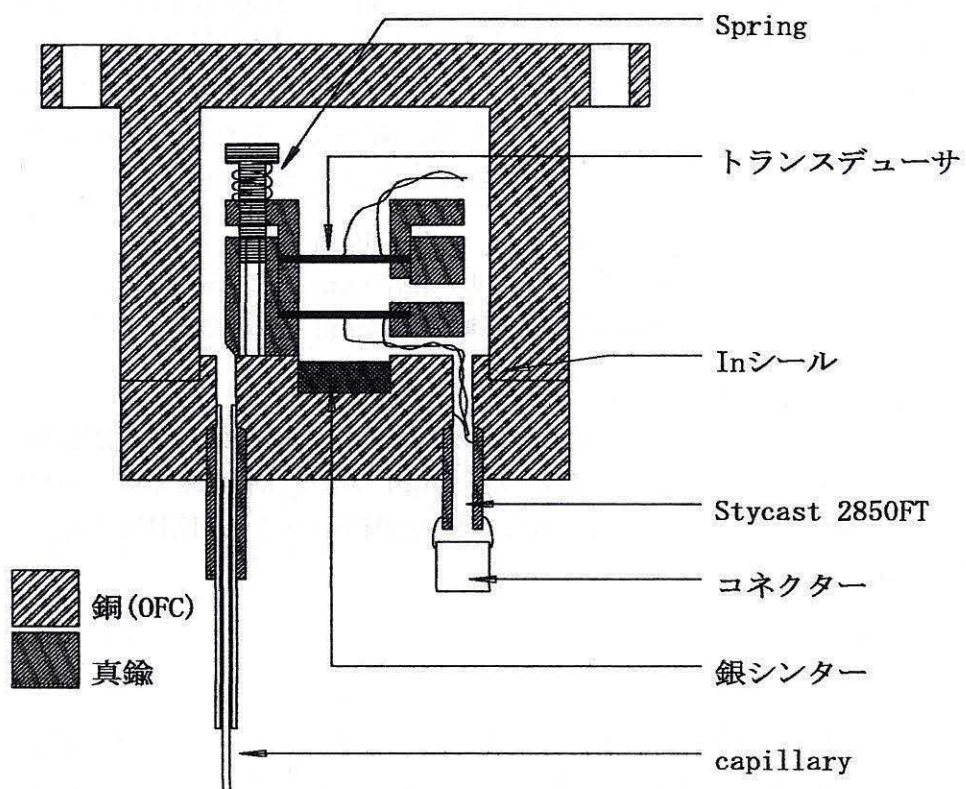


図 3.2: サンプルセルの概略図

## 3.4 測定原理

### 3.4.1 飛行時間法

#### 音速の絶対値測定

パルス状の音波が試料の端から端まで伝播するのに要する時間を測定することで、音速を求めることができる。試料の長さを $L$ としたとき、第1エコーを観測するまでの時間 $\tau$ (飛行時間)より、音速 $v$ は

$$v = \frac{L}{\tau} \quad (3.1)$$

ここで、気をつけなくてはならないこととして、位相検波した波から飛行時間を測定する場合、PSDを通過する時に、PSDの演算処理速度の関係上、実際の信号より、およそ $0.4\mu\text{s}$ 信号が遅れることを考慮しなければならない。また、位相検波をした場合、信号の立ち上がりが曖昧になり、およそ $\pm 0.2\mu\text{s}$ の誤差が生じてしまう。これは音速に換算して、およそ $\pm 3\text{m/s}$ の誤差に相当する。そのため、この方法だけでは、音速を精密に測定することは難しい。

### 3.4.2 位相検波法

#### 位相変化による音速の相対変化の測定

ある基準点を設定し、そこからの位相変化を観測することで、音速の相対変化を導くことができる。この方法は音速の相対変化を非常に高い精度で測定することができる。測定の原理は以下のようになる。

まず、参照信号を

$$V_0 = \cos(\omega t) \quad (3.2)$$

$$V_{90} = \sin(\omega t) \quad (3.3)$$

とする。一方、試料からの信号を

$$V_a = g(t, x) \cos \left[ \omega \left( t - \frac{x}{v} \right) + \delta \right] \quad (3.4)$$

とする。ここで、 $\delta$ はトランスデューサのところで生じる位相変化である。これらの信号はPSD内で掛け合わされ、

$$X = V_0 V_a = g(t, x) \cos(\omega t) \cos \left[ \omega \left( t - \frac{x}{v} \right) + \delta \right]$$

$$= \frac{1}{2}g(t, x) \left[ \cos \left( 2\omega t - \frac{\omega x}{v} + \delta \right) + \cos \left( \frac{\omega x}{v} - \delta \right) \right] \quad (3.5)$$

$$\begin{aligned} Y = V_{90}V_a &= g(t, x) \sin(\omega t) \cos \left[ \omega \left( t - \frac{x}{v} \right) + \delta \right] \\ &= \frac{1}{2}g(t, x) \left[ \sin \left( 2\omega t - \frac{\omega x}{v} + \delta \right) + \sin \left( \frac{\omega x}{v} - \delta \right) \right] \end{aligned} \quad (3.6)$$

さらにローパスフィルターを通すことにより高周波成分をカットする。

$$X = \frac{1}{2}g(t, x) \cos \left( \frac{\omega x}{v} - \delta \right) \quad (3.7)$$

$$Y = \frac{1}{2}g(t, x) \sin \left( \frac{\omega x}{v} - \delta \right) \quad (3.8)$$

このとき、振幅  $A$ 、位相  $\theta$  は、

$$A = \sqrt{X^2 + Y^2} = \frac{1}{2}g(t, x) \quad (3.9)$$

$$\theta = \tan^{-1} \left( \frac{Y}{X} \right) = \frac{\omega x}{v} - \delta \quad (3.10)$$

となる。

これより、基準点、測定点での位相をそれぞれ  $\theta_0$ 、 $\theta_1$ 、音速を  $v_0$ 、 $v_1$ 、飛行時間を  $\tau_0$ 、 $\tau_1$  とするとその間の音速変化  $\Delta v$  は、

$$\begin{aligned} \frac{\Delta v}{v_0} &= -\frac{\theta_1 - \theta_0}{\omega \tau_1} \\ &= -\frac{\theta_1 - \theta_0}{\omega \tau_0 [1 + (\theta_1 - \theta_0) / \omega \tau_0]} \end{aligned} \quad (3.11)$$

となる。

### 位相検波による音速の絶対値の測定

本実験では、すべて、飛行時間法で音速の絶対値を求めている。

しかし、位相検波法でも、音速の絶対値を求めることができる。また、この方法は、測定点を増やすことができ誤差を小さくできる利点がある。しかし、第2エコーまで必要であるため、音波の吸収が大きいとき測定できない欠点もある。

まず、超音波の周波数を変化させたときの位相の変化を考える。式 3.10 より、第 1 エコー、第 2 エコーそれぞれ、

$$\left(\frac{d\theta}{d\omega}\right)_1 = \frac{L}{v} - \frac{d\delta_1}{d\omega} \quad (3.12)$$

$$\left(\frac{d\theta}{d\omega}\right)_2 = \frac{L}{v} - \frac{d\delta_2}{d\omega} \quad (3.13)$$

ここで、 $\delta$  は同じトランスデューサでおきる位相変化であるので、

$$\frac{d\delta_2}{d\omega} - \frac{d\delta_1}{d\omega} = 0 \quad (3.14)$$

となる。よって、音速は、

$$v = \frac{2L}{\left[\left(\frac{d\theta}{d\omega}\right)_2 - \left(\frac{d\theta}{d\omega}\right)_1\right]} \quad (3.15)$$

となる。

### 3.4.3 吸収係数

音波の発信、受信での振幅を  $A_0(\text{dB})$ 、 $A_1(\text{dB})$  とすると、測定機器での変化を  $\alpha_0(\text{dB})$ 、その他トランスデューサや配線等によるロス  $\alpha_1(\text{dB})$  とすると、吸収係数  $\alpha(\text{dB/cm})$  は

$$\alpha = (A_0 - A_1 + \alpha_0 - \alpha_1) / L \quad (3.16)$$

ここで、 $\alpha_1$  は、液体  $^4\text{He}$  の吸収より求める。

吸収係数は周波数に依存するためできるだけ周波数を固定して行った方がよい。トランスデューサの信号レベルも周波数によって異なるので注意しなくてはならない。また、温度が安定していないと、デジタルオシロスコープでアベレージをしている間に、位相が変化して、実際の信号より小さくなってしまう。

## 第4章 結果

### 4.1 $^4\text{He}$

まず初めに、エアロジェルを含まない純粋な  $^4\text{He}$  の測定を行った。本実験は、初めての運転で、クライオスタット、サンプルセル、測定プログラム等の試験も兼ねている。

温度測定には、温度コントローラーが用いられておらず、定電流源とデジタルボルトメータを用いて直流四端子法で行った。クライオスタットの運転に不慣れであったため、温度の安定性が悪い。最終的には、もう一度、測定を行う必要があると思われる。

#### 音速

まず、飛行時間法による音速を図 4.1 に示す。これは、過去の文献値とほぼ一致している。

次に、3.0K を  $\theta = 0$  としたときの位相変化を図 4.2 に示す。2.17~2.18K に、超流動転移に依って起こる音速の変化から、位相変化の逆転が見られる。この位相変化に基準点を与えて、音速の絶対値に変換する。今回、 $^4\text{He}$  の音速は過去の文献からはっきりわかっているため、基準点は、3.0K、218m/s を用いた。これより、位相変化法による音速を図 4.3 に示す。

最低温度 (0.5K) での音速が文献値の 238m/s と良く一致しているため、正しい音速測定が行われたと判定した。

## 吸収

音波の吸収を図 4.5 に示す。1K 付近でのフォノンとロトンの効果による吸収のピークと、超流動転移点での吸収のピークがはっきり見られる。しかし、全体的に測定ノイズが大きい。その理由として、温度の安定が良くなかったことが上げられる。振幅  $A$  を位相検波した (X,Y) 成分から求めたため、デジタルオシロスコープでアベレージを取る間、温度が安定せず、その間の位相変化が、大きく影響したものと考えられる。

また、これには、トランスデューサや配線などでのロス  $\alpha_1$  が考慮されていない。過去の文献によると、1.5K 近傍の吸収係数は 5dB/cm 以下である。これを信用して、 $\alpha_1$  は、13dB と仮定する。これより、吸収係数は、図 4.5 となる。以後、これを考慮して、Aerogel 中での液体  $^4\text{He}$  の吸収係数を求める。

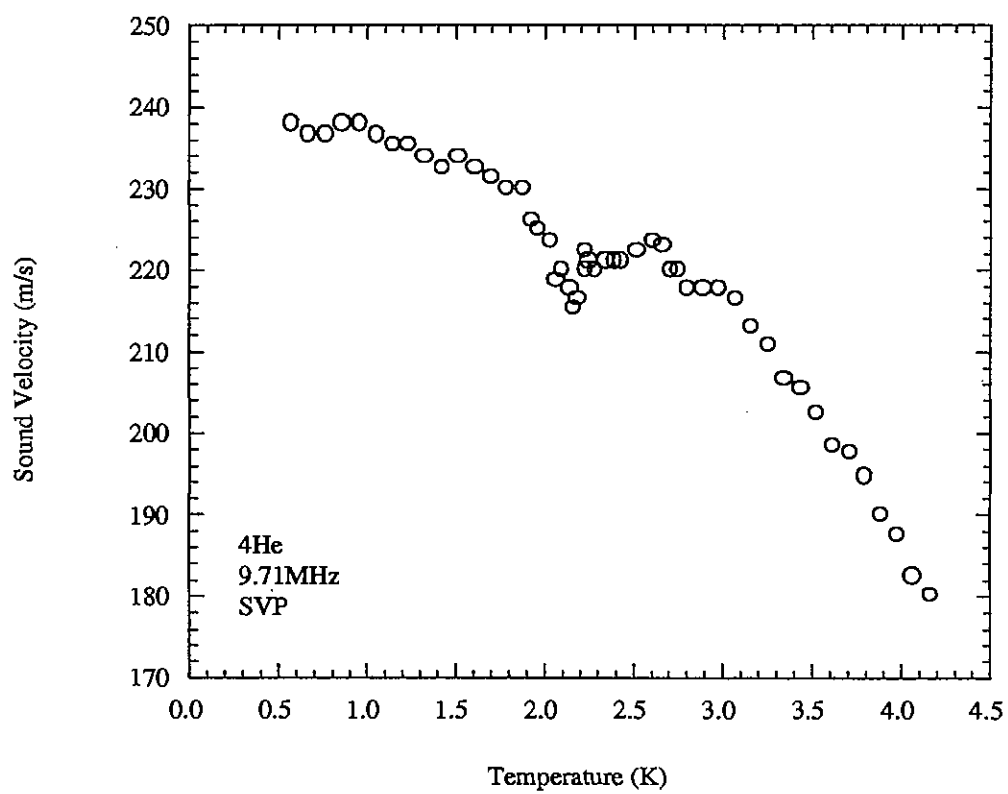


図 4.1: 液体  $^4\text{He}$  の音速 (飛行時間法)



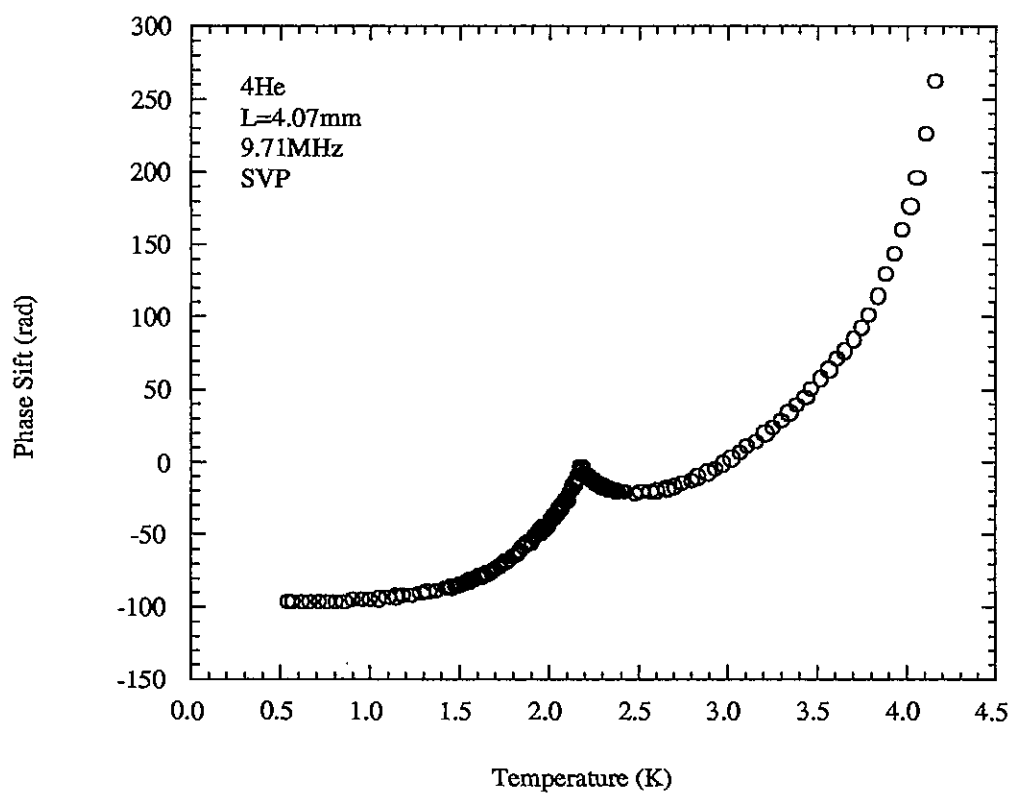


図 4.2: 位相変化  
3.0K のとき  $\theta=0$  とした

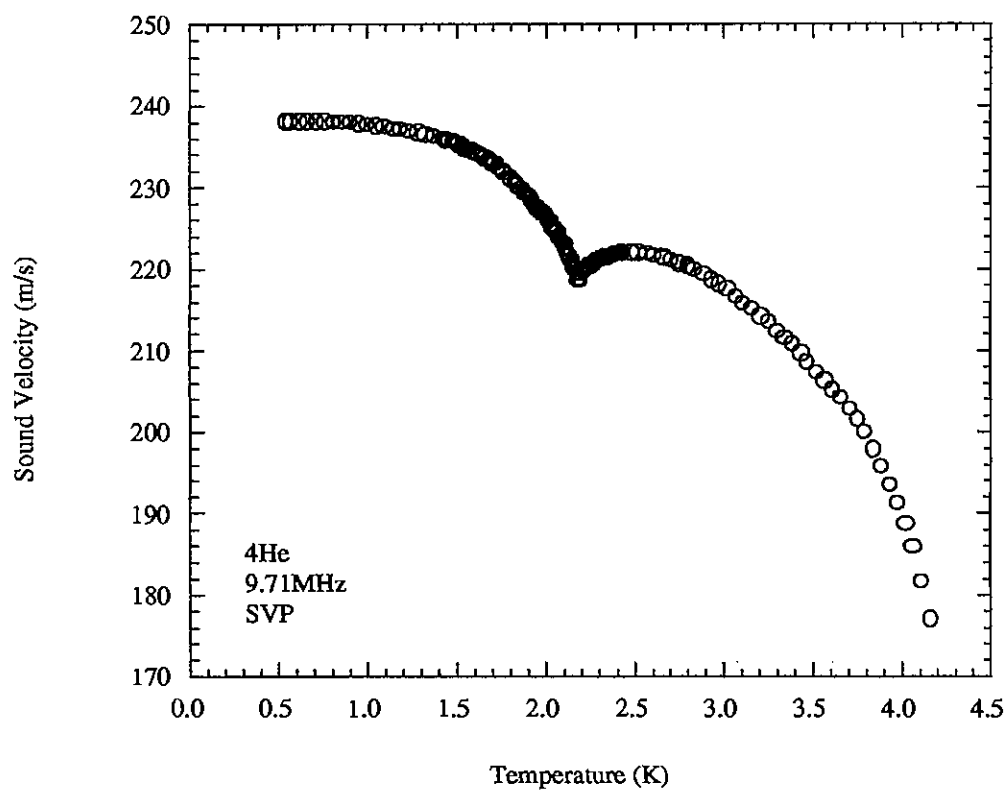


図 4.3:  $^4\text{He}$  の縦波音波の音速 (位相検波法)  
基準点 3.0K 218m/s

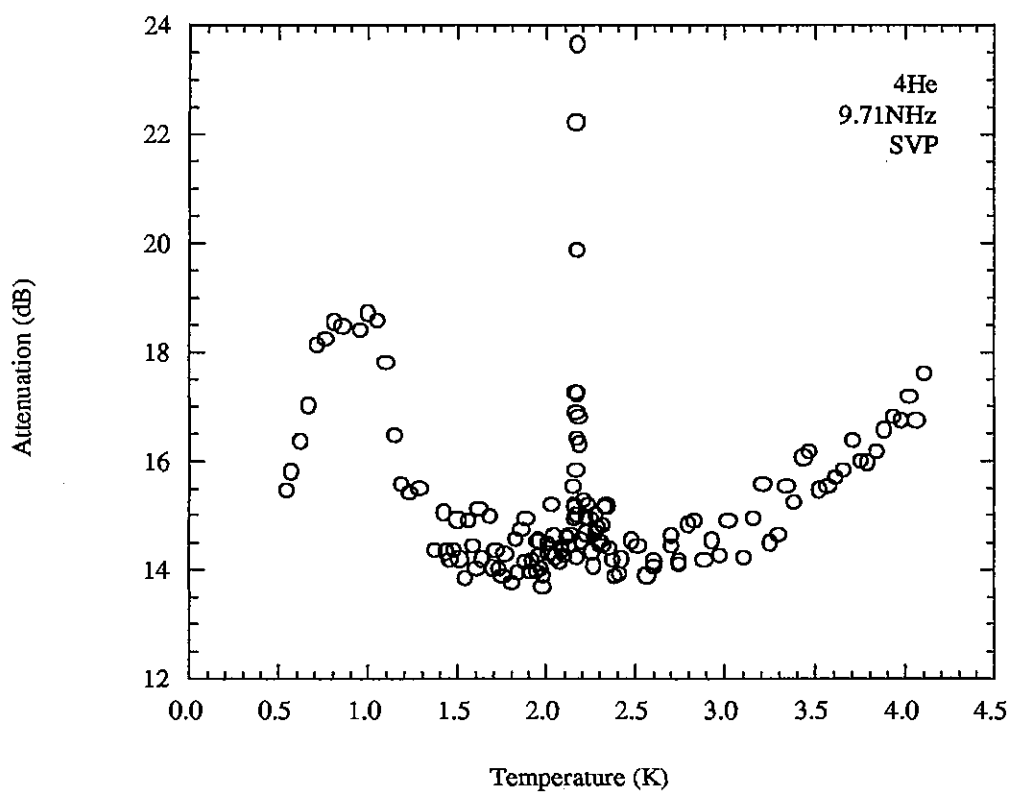


図 4.4:  $^4\text{He}$  の吸収

$^4\text{He}$  の吸収：ただし、これには測定系でのロスも含まれている。 $^4\text{He}$  の吸収は、およそ 10MHz の超音波では、1.5K 前後で 1dB/cm 以下である。よって測定系のロスがおよそ 13dB 含まれていると考えることができる。

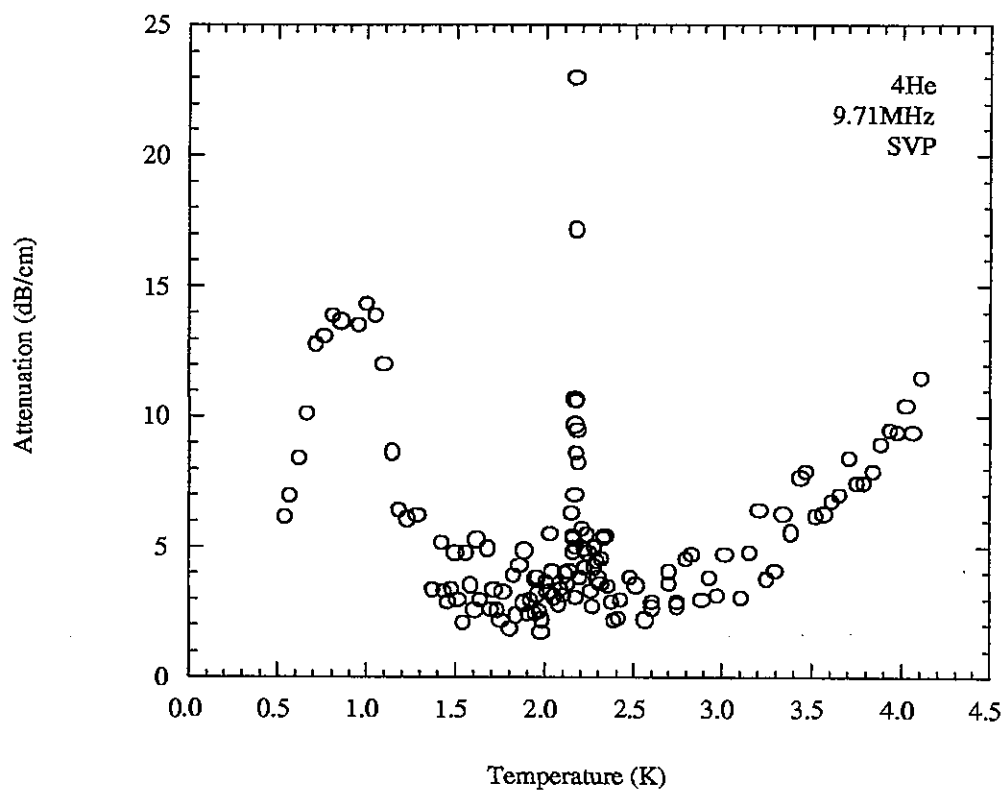


図 4.5:  $^4\text{He}$  の吸収係数

## 4.2 $^4\text{He}$ in 92.6% Aerogel

温度測定は、定電流源とデジタルボルトメータを用いて直流四端子法で行った。吸収が大きいため、信号が小さくなり、ノイズが大きい。

### 音速

飛行時間法による音速測定(図4.6)より、基準点を、1.50K、248m/sとして、位相検波法を用いると、音速は図4.7のようになる。音速は、bulk  $^4\text{He}$  に比べ速く、音速の変位が全体的に小さい。

音速の極小が2.166~2.170Kに見られた。bulk  $^4\text{He}$  の実験では、2.170~2.180Kであった。Aerogel中でも、超流動転移点と音速の極小が一致するものと仮定すると、bulk  $^4\text{He}$  のときに比べて、超流動転移点が低下していることがわかる。

### 吸収係数

吸収係数を図4.8に示す。bulk  $^4\text{He}$  に比べて、全体的にかなり大きな吸収係数を持っている。超流動転移点付近での吸収のピークは観測されたが、1K付近でのピークが観測されずに、1.5K程度から低温でほぼ一定の吸収係数が得られた。bulk  $^4\text{He}$  での  $T^4$  の温度依存性とは大きく異なっている。一方で、3.3K付近に大きな吸収のピークが観測された。また、超流動転移点での吸収のピークと、音速の極小の温度は、一致している。

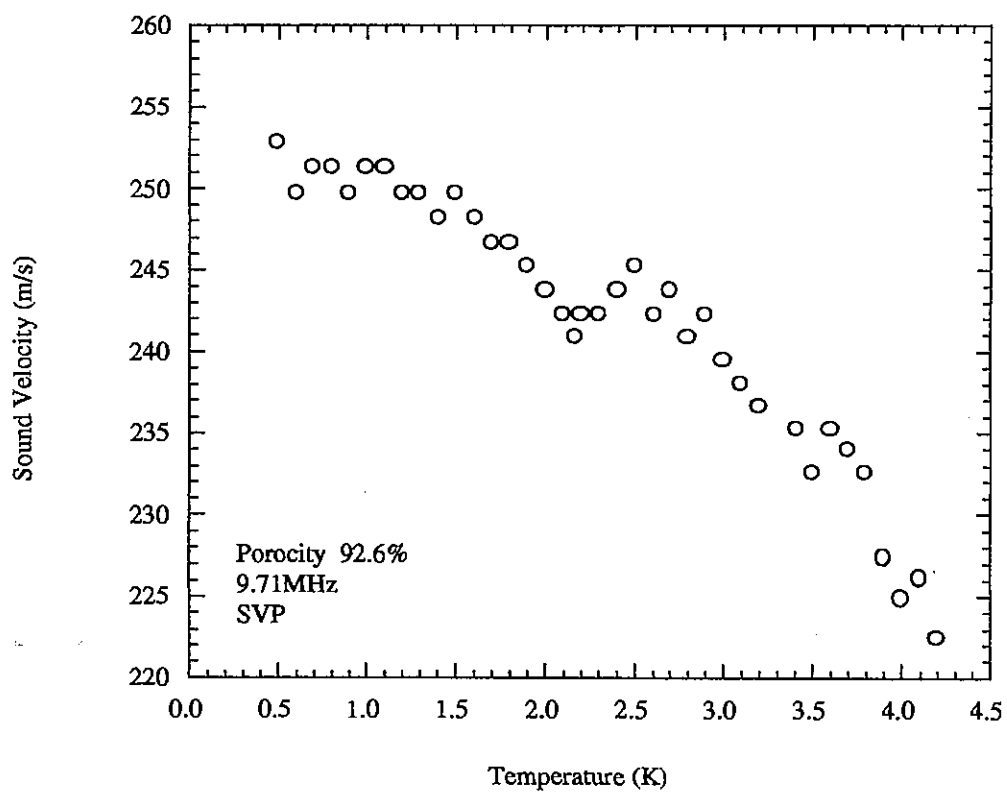


図 4.6: Aerogel(Porosity 92.6%) 中の液体  $^4\text{He}$  の音速 (飛行時間法)

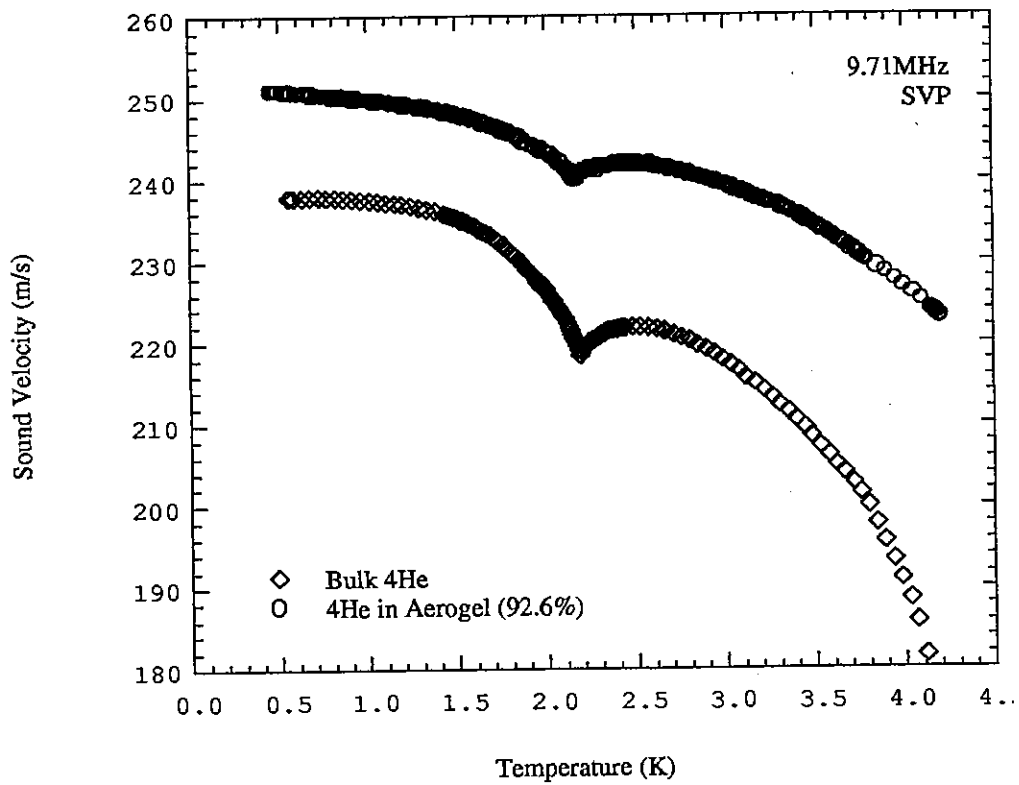


図 4.7: Aerogel(Porosity 92.6%) 中の液体  $^4\text{He}$  の音速 (位相検波法)  
基準点 1.50K 248m/s

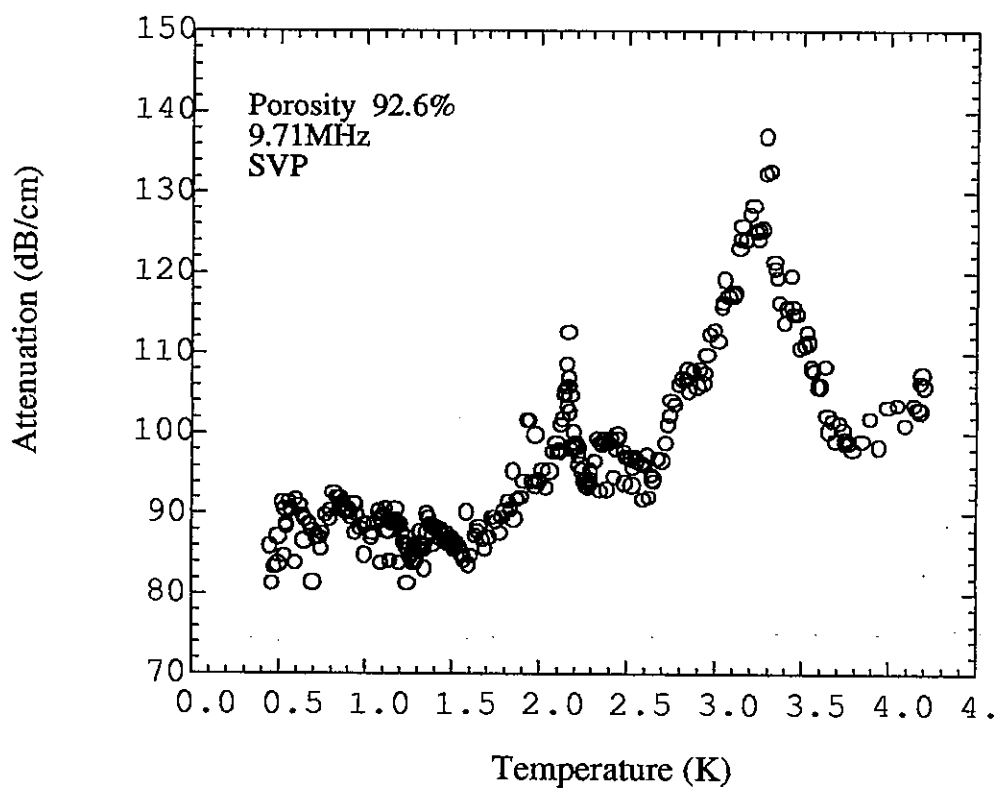


図 4.8: Aerogel(Porosity 92.6%) 中の液体  $^4\text{He}$  の吸収係数



### 4.3 $^4\text{He}$ in 94.0% Aerogel

空孔率が92.6%のAerogelのとき、吸収が大きいためS/N比が落ち、飛行時間や吸収係数の測定にノイズ等が大きく影響してしまった。今回、その改善策として、スペーサーを4.07mmから、2.974mmに減らし、音波の伝播距離を短くして測定した。また、Pre Ampを、Gainが+25dBから、+46dBのものに交換した。これにより、S/Nの向上を計ることができ、ノイズに強くなった。

94.0%は、2回測定したが、1回目は、測定中に、温調ヒーターが切れたため、温度の安定が悪く、測定にばらつきがあった。1回目も2回目もほぼ同じ結果が得られているので、2回目の測定をもって議論する。

#### 音速

飛行時間法による音速測定(図4.9)より、基準点を、1.50K、230m/sとして、位相検波法を用いると、図4.10のようになる。

音速の極小は、2.169Kに観測された。bulk  $^4\text{He}$ のときに2.17~2.18Kの間に観測されたのに比べて、低温に移動していることがわかる。

#### 吸収

吸収係数を図4.11に示す。温度コントローラーを用いることで温度の安定性が増したこともあり、非常に精度良く測定できている。

結果は、92.6%同様、超流動転移点近傍に吸収のピークが存在する。しかし、吸収のピークが、音速の極小に対して、およそ2mK高温にずれている。また、3.3K近傍に92.6%のときのような鋭いピークは観測されなかったが、少し吸収が大きくなっている。

また、この試料でも1K近傍の吸収のピークは観測されず、超流動転移点から、温度とともに吸収係数が減少したのち、およそ1K以下の温度で吸収係数が一定となった。

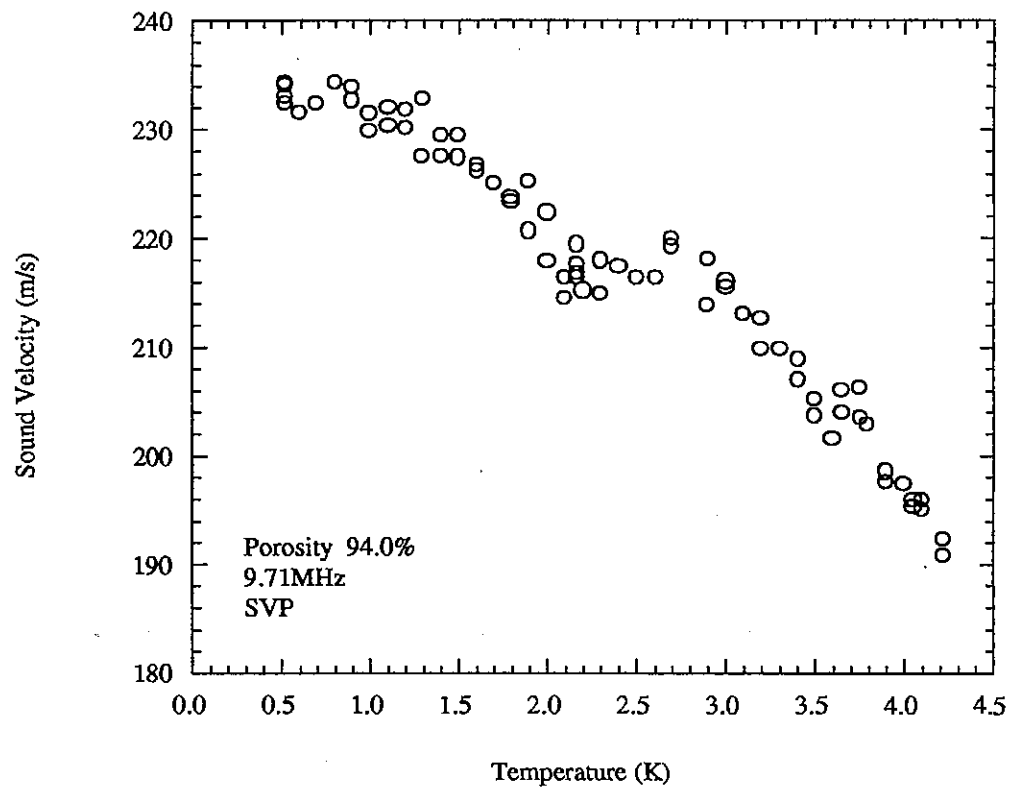


図 4.9: Aerogel(Porosity 94.0%) 中の液体  $^4\text{He}$  の音速 (飛行時間法)

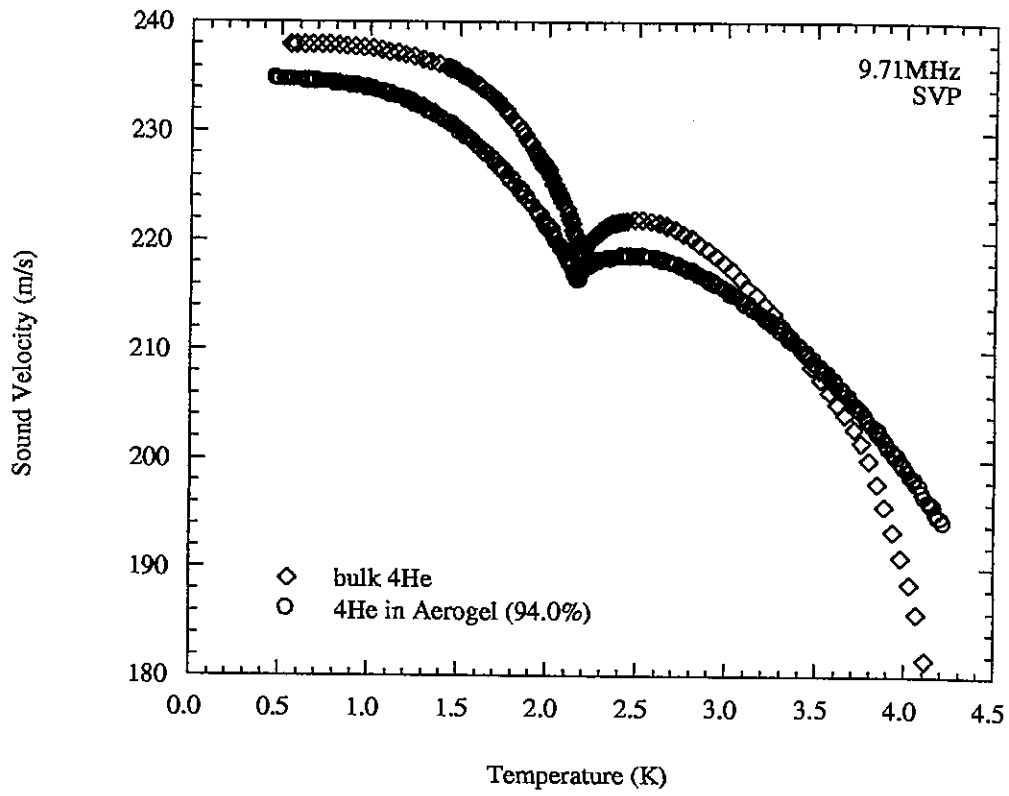


図 4.10: Aerogel(Porosity 94.0%) 中の液体  $^4\text{He}$  の音速 (位相検波法)  
基準点 1.50K 230m/s

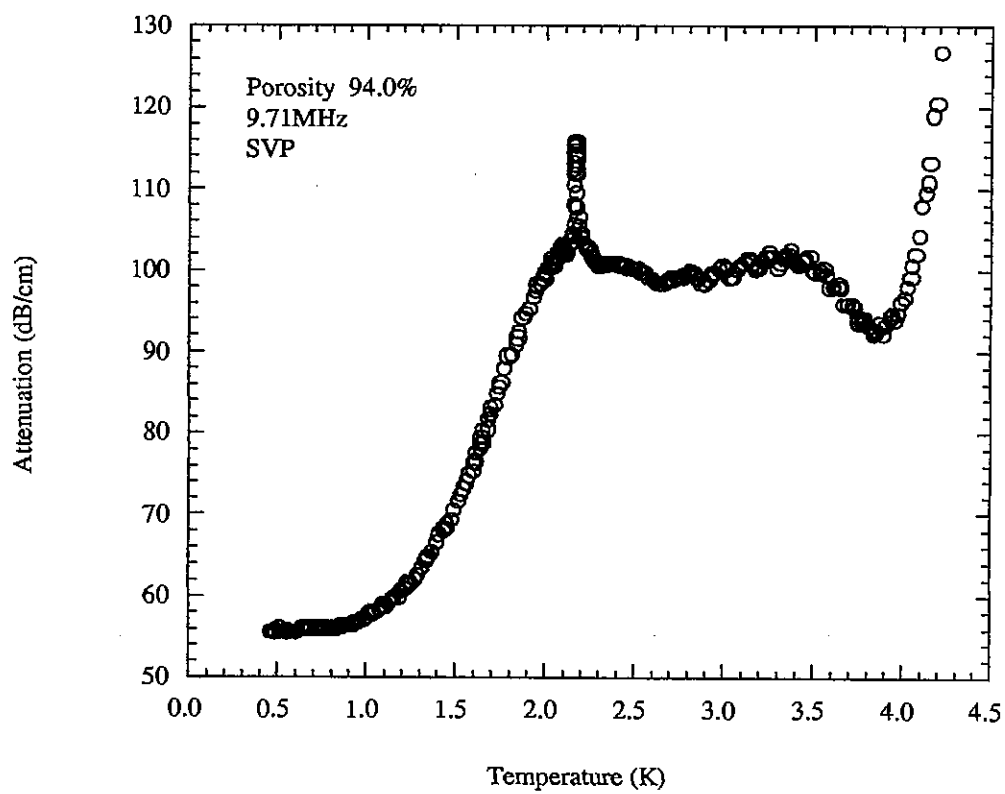


図 4.11: Aerogel(Porosity 94.0%) 中の液体  $^4\text{He}$  の吸収係数

## 第5章 考察

### 5.1 Aerogel 中での音速

Aerogel 中での音速を、超流動相、常流動相に分けて考える。  
まず、一般的な弾性体を伝わる縦波の音速は、

$$C^2 = \frac{K}{\rho} \quad (5.1)$$

と表すことができる。ここで、 $K$  は弾性率、 $\rho$  は液体の密度である。

#### 5.1.1 常流動相

常流動相において、液体  $^4\text{He}$  は通常の液体と同様に、弾性率と密度に影響する。ここで、密度  $\rho$  は Aerogel の密度  $\rho_a$  も含めて、

$$\rho = \rho_a + p\rho_{\text{He}} \quad (5.2)$$

となる。つぎに、全体の弾性率  $K$  は、

$$\begin{aligned} K &= K_a + pK_{\text{He}} \\ &= C_a^2 \rho_a + pC_{\text{He}}^2 \rho_{\text{He}} \end{aligned} \quad (5.3)$$

これより、複合系の音速は次式で表せる。

$$C^2 = \frac{C_a^2 \rho_a + pC_{\text{He}}^2 \rho_{\text{He}}}{\rho_a + p\rho_{\text{He}}} \quad (5.4)$$

### 5.1.2 超流動相

超流動相では、2章で述べた J. D. Maynard et al のモデルに適応させる。式 2.17 より

$$C^4 - C^2 (C_1^2 + C_2^2) + C_1^2 C_2^2 + \frac{\rho_a}{\rho_n} (C^2 - C_a^2) (C^2 - C_4^2) = 0$$

この永年方程式の解の速い音速が、第1音波と第4音波の中間の音波であり、Aerogel 中での圧力波となる。

#### フィッティング

ここで、不明なパラメータは Aerogel の音速  $C_a$  である。

まず、本実験のサンプルセルでは、Aerogel だけの音速を測定することはできなかつた。その理由として、Aerogel 自身は非常に音波の吸収が大きいこと、また、Aerogel とトランスデューサが密着していないため音波が伝わっていない可能性があることが上げられる。ここでは、92.6% Aerogel の音速を 260m/s, 255m/s, 250m/s、94.0% Aerogel の音速を 215m/s, 210m/s と仮定して、フィッティングを行なった。空孔率が大きくなると音速が遅くなることは、Aerogel の音速の密度依存性と一致している。また、過去の Aerogel の音速データと音速の絶対値に矛盾はない。それぞれのフィッティングしたものを図 5.3(92.6%)、図 5.4(94.0%) に示す。

しかし、ここで、92.6%の Aerogel において、Maynard et al のモデルに疑問がある。このモデルから考えると、 $C_a > C_4 |_{T \rightarrow 0}$  のとき、第1と第4音波の中間の音波は、 $T \rightarrow 0$  で、 $C_{14} = C_a$  となる。また、第2音波に類似した音波は、 $T \rightarrow 0$  で、 $C_{2a} = C_4$  となる(図 5.1 参照)。 $(C_a < C_4 |_{T=0})$  のとき、 $T \rightarrow 0$  で、第1と第4音波の中間の音波  $C_{14} = C_4$ 、第2音波に類似した音波  $C_{2a} = C_a$  となる。(図 5.2 参照) 仮に  ${}^4\text{He}$  が、 $T \rightarrow 0$  で、 $\rho_s/\rho = 1$  で粘性結合がなくなり、Aerogel から独立して音波を伝えるものと考えると、 $C_{14} = C_4 (= C_1)$  となった方が、納得できる。

それでは、本実験の結果はどうであろうか。 $T \rightarrow 0$  のとき、 $C_{14} \rightarrow C_4$  ではない。 $C_{14} \rightarrow C_a$  の可能性はあるものの、Maynard et al のモデルでは、音速の  $T \rightarrow 0$  と  $T=2.17$  のときの変位が、実験の値と明らかに異なる。

それでは、94.0%のときについて考えてみる。これも、Maynard et al のモデルでは疑問が残る結果になった。ここで、Maynard et al は、測定できた領域が 1.3~1.8K であり、ここからこのモデルを導いた。つまり、

局所的には適応できるかもしれないが、超流動相すべての温度領域で、適応するとは限らない。

そもそも、Aerogel 中での超流動密度の温度依存性が、bulk  $^4\text{He}$  と同様に、 $T \rightarrow 0$  で  $\rho_s/\rho = 1$  と仮定しているが、これが成立していない可能性もある。また、Aerogel 中では、0.5K 近傍でもまだ音速が変化していて、bulk の音速変化と異なる。これは、0.5K 近傍での超流動密度が、bulk では一定であるのに対して、Aerogel 中では変化している可能性があることを示している。これがわからない限り、Maynard et al のモデルを用いることができるかどうかもわからない。どちらにしても現段階では、Aerogel 中での超流動密度は、全温度領域で測定されていない。今後の研究課題として期待したい。

また、常流動相については、現在のフィッティングのモデルで、 $T_\lambda$  を一致させて  $T=4.2\text{K}$  を見ると、モデルと本実験の間に、5m/s 程度の差が生じてしまう。この理由として、粘性などが考えられるが、こちらについてももう少し考えてみる必要がある。

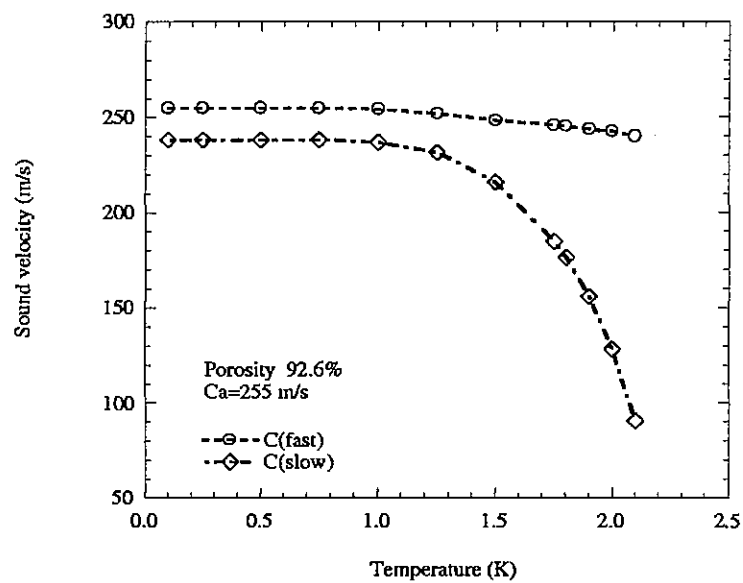


図 5.1:  $C_a=255\text{m/s}$  ( $C_a > C_4 |_{T \rightarrow 0}$ ) のときの Maynard et al のモデル

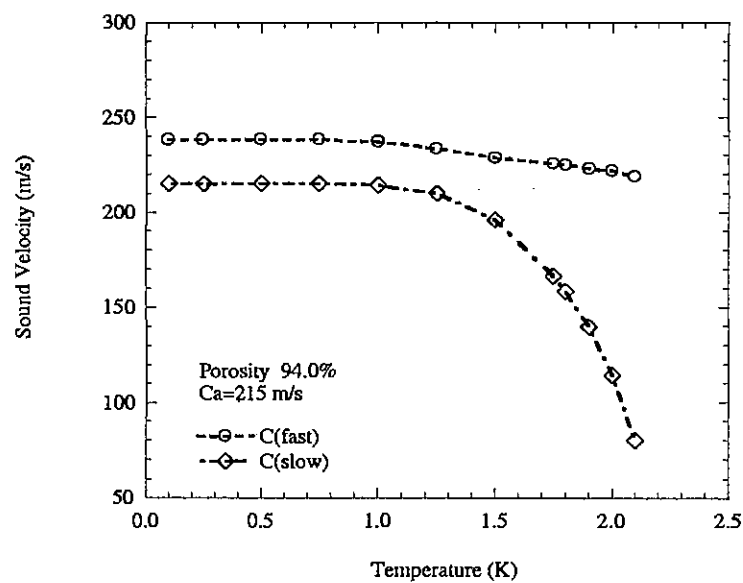


図 5.2:  $C_a=215\text{m/s}$  ( $C_a < C_4 |_{T \rightarrow 0}$ ) のときの Maynard et al のモデル



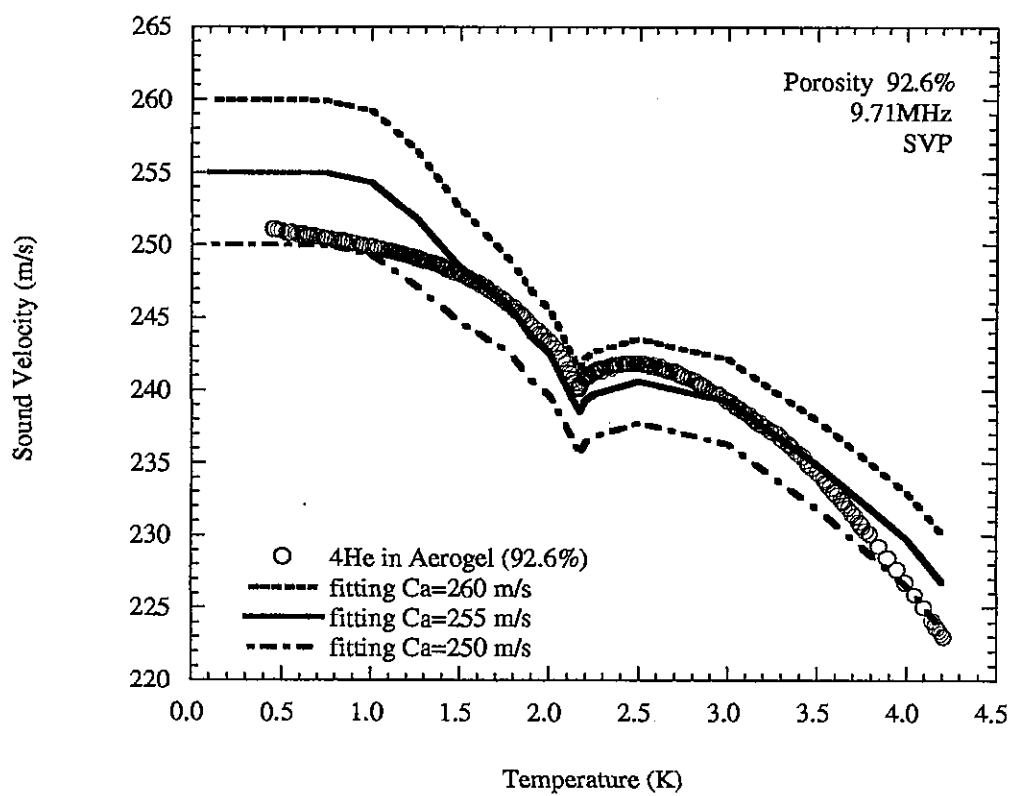


図 5.3: Aerogel(Porosity 92.6%) 中の液体  $^4\text{He}$  の音速 fitting

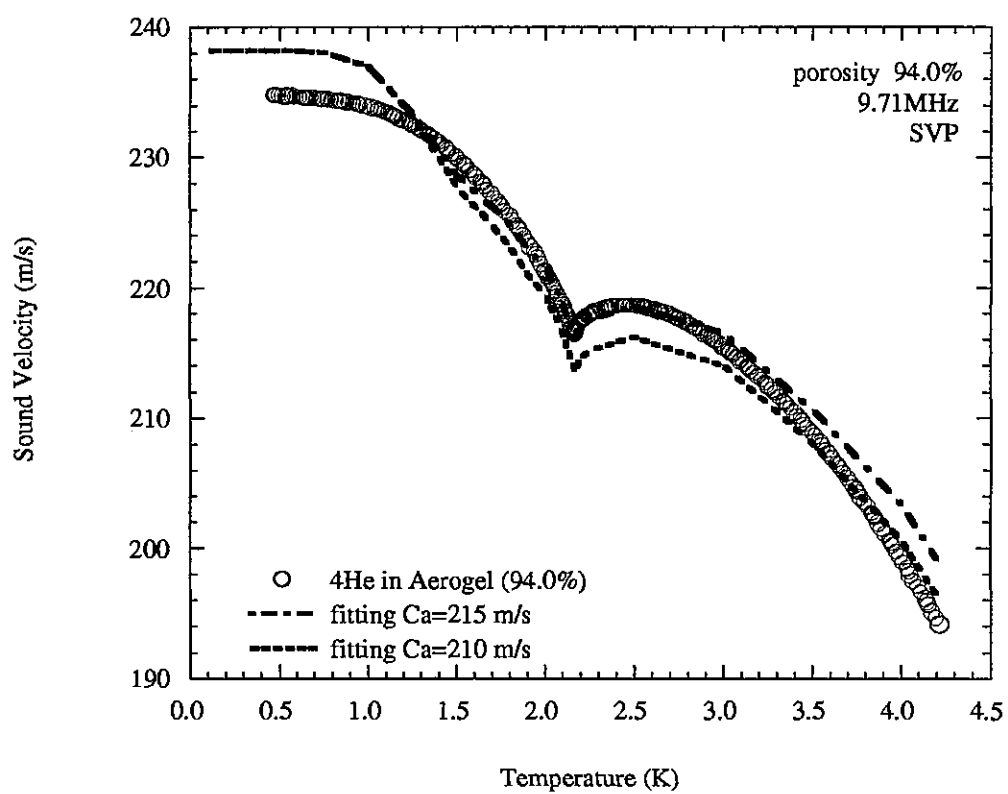


図 5.4: Aerogel(Porosity 94.0%) 中の液体  $^4\text{He}$  の音速 fitting

## 5.2 超流動転移点

それぞれの超流動転移点は、Cernox 温度計の較正により下のように測定された。

$^4\text{He}$	2.17~2.18K
92.6%	2.166~2.170K
94.0%	2.169K

純粋な  $^4\text{He}$  で、超流動転移点の絶対値の正確な較正は十分行えていないが、Aerogel 中での転移点が明らかに低温に下がっていることがわかる。

これは、Chan et al による実験でも示されており、彼らによると、Aerogel によって空間の自由度が奪われ、コヒーレンス長が抑制されるためであると、説明されている。

## 5.3 Aerogel 中での吸収

### 超流動転移点近傍

Aerogel 中でも bulk  $^4\text{He}$  同様に吸収のピークが、シャープに存在する。Aerogel は、フラクタルな構造を持っており、各々の領域で、大きさが異なる。そのため、個別の領域で、個別の超流動転移点を持つと仮定すると、吸収のピークが滑らかになると考えられる。しかし、吸収のピークはシャープである。これは、すべての領域で同時に吸収のピークを持つため、超流動もすべての領域で同時に起こっていることを現している。

次に、94.0%のとき、超流動転移点近傍の吸収のピークが、音速の極小に対して 2mK 高温にずれた原因について考える。純粋な  $^4\text{He}$  では、転移点より低音に吸収のピークがあることがわかっている<sup>7)</sup>。これは、音波の周波数に依存しており、およそ 10MHz の音波までは、常流動成分が、第 1 音波に十分に追従できるのに対して、超流動成分が、コヒーレンス長を  $\xi$ 、第 2 音波の音速を  $v_2$  としたとき、

$$\tau \sim \xi/v_2 \quad (5.5)$$

程度の時定数でしか追従できない。これより、超流動成分と常流動成分の位相がずれて、第 1 音波が第 2 音波に励起されてしまう。そのため、第 1 音波のエネルギーが第 2 音波としてロスしてしまうため、吸収のピークが転移点よりわずかに低温に生じる。

しかし、今回の結果では、低温ではなく、高温にずれている。また、オーダーも 1 桁大きい。よって、これが原因とは考え難い。今回はまた、bulk  $^4\text{He}$  での転移点を精密に測定できていない。これが Aerogel ゆえにおこり得ることなのか、我々の装置の特性なのか、まだわからない。

### 超流動相

超流動相におけるフォノンやロトンによる効果であるが、bulk  $^4\text{He}$  のときのような吸収のピークが Aerogel 中でみえない。この原因が、ロトンが励起されないためなのか、Aerogel による吸収が大きいために隠れているのか、まだわからない。ただし、Aerogel 中での液体  $^4\text{He}$  の中性子散乱の実験<sup>4)5)</sup>では、およそ 1.9K のあたりにロトンの励起が見つかっている。

次に、低温部で、吸収係数が一定となる原因について考える。まず、フォノンと、Aerogel の平均自由行程を考える。フォノンは、低温になるに連

れ、平均自由行程が大きくなる。一方、Aerogelの平均自由行程は、構造によって決まり、空孔率が大きいほど大きくなる。フォノンの平均自由行程が、Aerogelの平均自由行程より小さいとき、フォノン・フォノン散乱過程が起こるが、低温になることにより、フォノンの平均自由行程が、Aerogelの平均自由行程より大きくなると、フォノン・フォノン散乱過程が抑制され、フォノン・エアロジェル散乱過程が起こるようになる。フォノン・フォノン散乱による吸収係数は、 $T^4$ に依存するのに対して、フォノン・エアロジェル散乱は、Aerogelの構造で決まるため、温度に依存しない。これにより、低温部で、吸収係数が一定になると考えられる。また、空孔率が大きいほど、Aerogelの平均自由行程が大きくなり、フォノン・エアロジェル過程が起こりにくくなる。これより、空孔率が大きいほど、より低温で、吸収が一定になり、また吸収係数も小さくなると考えられる。

今後、異なった空孔率のAerogelを用いることで、確認していく必要がある。

### 常流動相

3.3K近傍の吸収について考える。ここでは、92.6%と94.0%のAerogelで3.3Kの吸収係数の変化に大きな違いがある。これは、Aerogelの構造が影響している可能性が大きい。今後、92.6%と94.0%の中間の空孔率を持つAerogelや、より高い空孔率を持つAerogelを用いることで、この原因について解明していく必要がある。

## 第6章 まとめ

本研究の成果としては、Aerogel 中での音波を 0.5~4.2K の温度領域をすべて測定できたことが上げられる。

そして、比熱の実験同様、音速の測定でも超流動転移点が低温に下がることを確認した。また、Aerogel 中でも超流動転移点において吸収のピークがあることがわかった。一方で、ロトンの励起による吸収のピークが確認できなかったが、低温で、吸収係数が一定になった。また、常流動相で、吸収のピークが発見された。

今後の課題としては、超流動相、常流動相ともに、音速、吸収のメカニズムを解明する必要がある。Maynard et al のモデルだけでは、不十分である。音波の周波数による粘性侵入長も考えていかななくてはならないし、粘性係数も関係しているかもしれない。他にも、Aerogel 中での超流動密度など、いろいろな方向から、音速、吸収ともに検証していく必要がある。

今後、行っていかなければならないこととして、もう一度、純粋な  $^4\text{He}$  で測定することでリファレンスをしっかりさせる必要がある。また、空孔率の異なる Aerogel を用いることで、音速や吸収係数、超流動転移点の空孔率依存性を解明する必要がある。

## 付録1 : Frequency Divider 及び Pulse Generator の作成

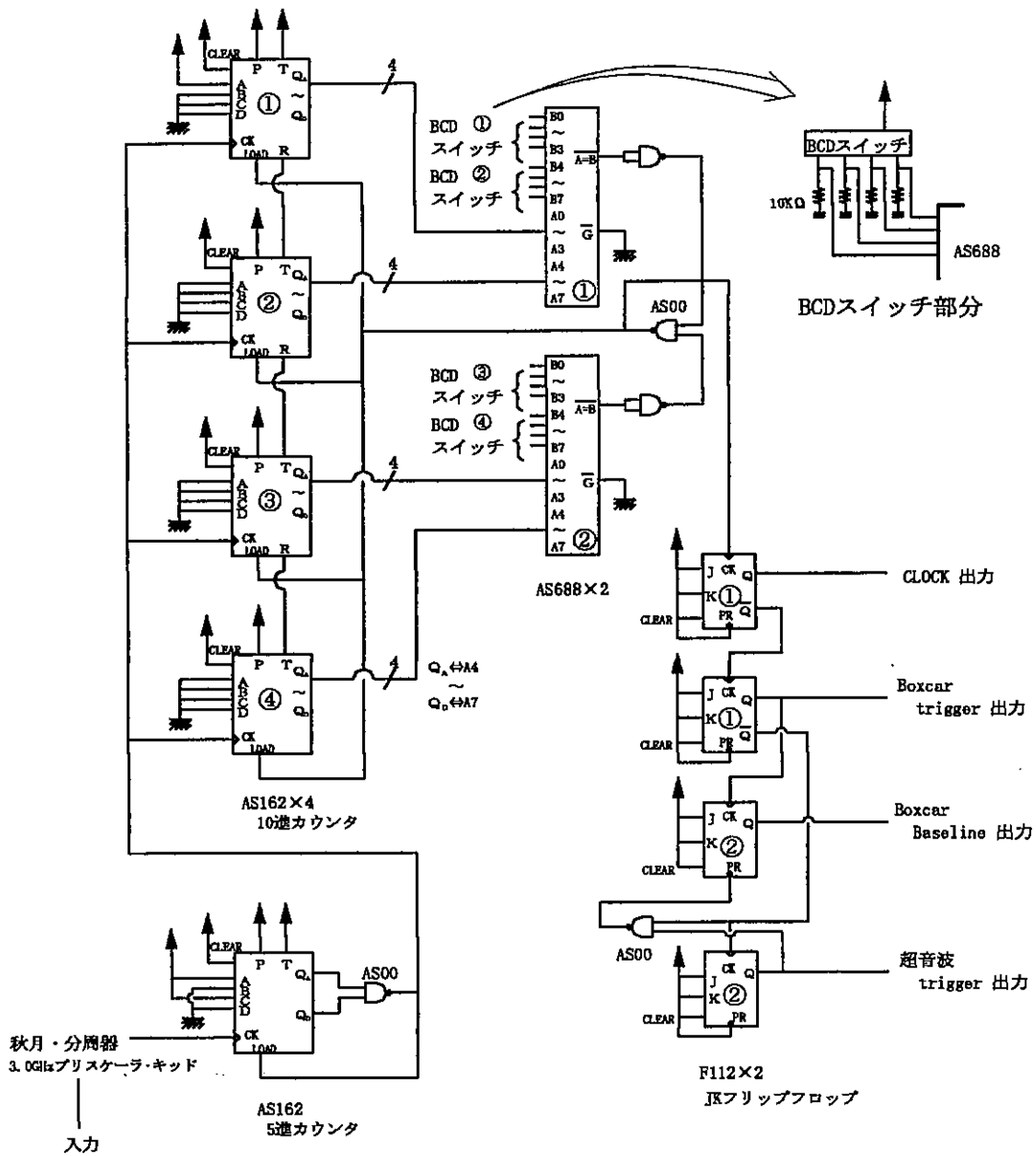
frequency divider と pulse generator は我々の研究室で自作した。

回路図及び、注意点を示しておく。回路図は、IC の能力を理解していなくても、IC のピン番号を合わせるだけで簡単に組めるようにしてある。また、frequency divider については、box 内の IC の配列も示しておいた(これは、一例でしかないので、作り直すときは、各々考えてください)。

実験では 10MHz を扱うため、IC は高周波に強いものを用いること。我々は、主に AS シリーズを用いて製作した。

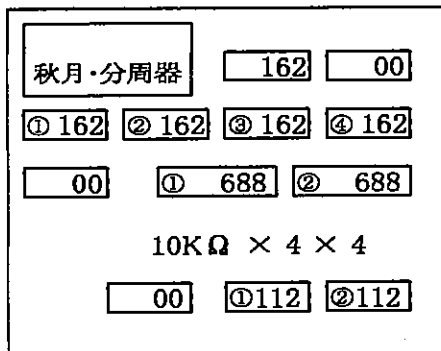
本実験では、frequency divider の出力は、clock を pulse generator に入力して、boxcar trigger をデジタルオシロの trigger として入力している。

# Frequency Divider 回路図



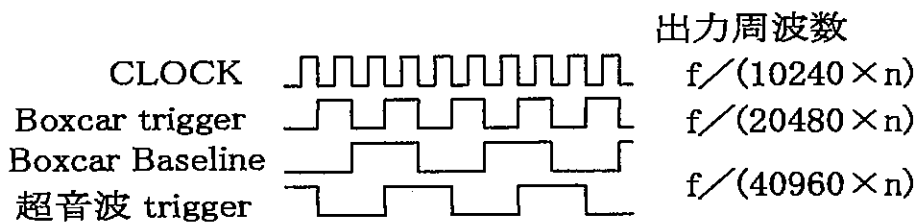
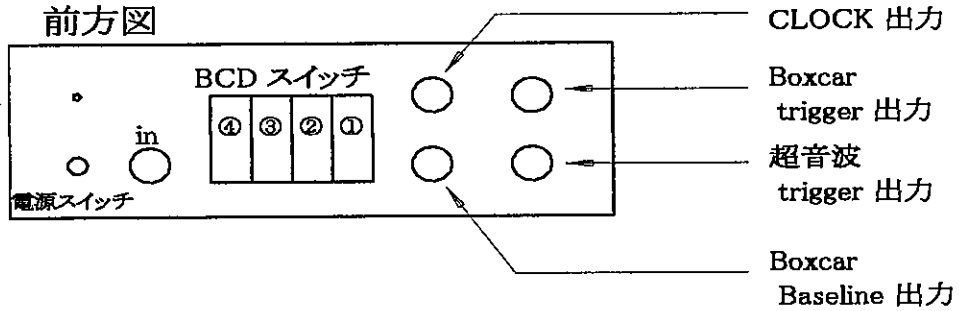


IC配置図



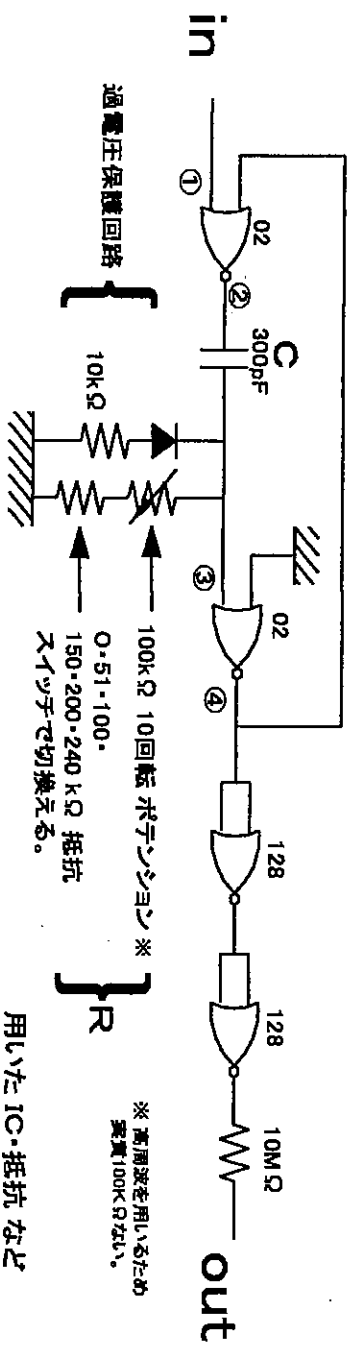
導線  
 赤 → H(5V)  
 黒 → L(0V)  
 黄 → 他

前方図

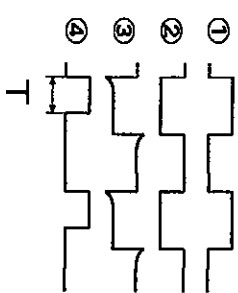


f: 入力周波数  
 n: カウンターの値

### Pulse Generator Gateを開閉する回路



コンシヨット・マルチバイブレータ回路を用いて、右のような信号を作る。ここで時間幅Tを調節できるようにする。



$$T \propto R \cdot C$$

より、抵抗値を変化させることにより、Tを調節する。しかし、今回は、用いた10回転ポテンシヨンが、高周波を用いるために、抵抗値が正しく得られないので、細かい調節は、オシロなどを用いて、調節しなくてはならない。目安としては、左のようになる。

固定抵抗(kΩ) Tの範囲(μ sec)

0	0 ~ 14
51	12 ~ 26
100	22 ~ 38
150	33 ~ 48
200	43 ~ 58
240	51 ~ 68

用いたIC・抵抗など  
 IC 7402, 74128  
 抵抗 10k, 51k, 100k, 150k, 200k, 240k, 10M Ω  
 100k Ω 10回転ポテンシヨン  
 他 ダイオード

※ 高周波を用いるため 実質100k Ωでない。

## 参考文献

- 1) M. J. MacKenna, Tania Slawecki, and J. D. Maynard : Phys. Rev. Lett. **66** (1991) 1878.
- 2) Jongsoo Yoon, Dmitri Sergatskov, Jian Ma, Norbert Mulders, and Moses H. W. Chan : Phys. Rev. Lett. **88** (1998) 1461.
- 3) G. K. S. Wong, P.A. Crowell, H. A. Cho, and J. D. Reppy : Phys. Rev. Lett. **65** (1990) 2410.
- 4) M. R. Gidds, P. E. Sokol, W. G. Stirling, R. T. Azush, and M. A. Adams : J. Low. Temp. Phys. **107** (1996) 33.
- 5) R. M. Dimeo, P. E. Sokol, D. W. Brown, C. R. Anderson, W. G. Stirling, M. A. Adams, S. H. Lee, C. Rutiser, and S. Komarneni : Rev. Lett. **79** (1997) 5274.
- 6) 住吉孝行 : 日本物理学会誌 **53** (1998) 690.
- 7) R. D. Williams and I. Rudnick : Phys. Rev. Lett. **25** (1970) 276.
- 8) 生嶋 明 : 固体物理 **11**(1976) 79, 143, 197, 305, 365.
- 9) 松本宏一 : 日本物理学会誌 **52** (1997) 850.
- 10) 山田一雄, 大見哲巨 : 超流動 新物理学シリーズ 28 培風館
- 11) 田沼静一, 馬宮孝好 : 超低温 実験物理科学シリーズ 1 共立出版

### 参考資料 3

核断熱消磁冷凍機の製作について

## 概要

核断熱消磁法は現在、1mK 以下の超低温を生成することが出来る唯一の方法である。核スピンを断熱消磁するアイデアは 1934 年、Gorter によって提唱され、実験は Kurti によって初めて成功した。この実験では核スピンの温度を  $15\mu\text{K}$  まで冷却したが、核スピンの冷却されていたのはほんの数分であり、格子温度は初期温度の 12mK に留まった。1970 年、核断熱消磁は、核を冷却材として用いる冷凍技術として Lounasma によって実質的に確立された。現在では標準となっている希釈冷凍機と超伝導マグネットを組み合わせることによって、銅の核ステージを数百  $\mu\text{K}$  に冷却するための初期条件を得ることが可能になった。その後、世界中の研究室において続々と核断熱消磁装置が建設され、超低温領域の研究に拍車をかけることとなった。希釈冷凍機及び、超伝導マグネットの性能は年を追う毎に向上してきており、また核ステージの形状も最適化されつつある。現時点での最低到達温度は、核スピン温度では Rh の核を  $250\text{pK}^1$  まで冷却し、格子温度では銅の核ステージを  $12\mu\text{K}^2$  まで冷却したのが世界記録となっている。

1K 以下の極低温・超低温領域で正確な温度計測を行なうことは、超低温度をつくり出すことと同様に難しい。これまでに超低温で感度良く温度を計測できる温度計が幾種類か設計・製作され、使用されてきた。今回、超低温用温度計として最も広く用いられ信頼性の高い温度計として、 $^3\text{He}$  融解圧温度計と Pt-NMR 温度計を設計・製作及び試験を行なった。

以下に、核断熱消磁装置の設計の詳細について述べる。

# 目次

概要	i
1 核断熱消磁法の原理	1
1.1 核冷却	1
1.2 核冷凍	2
1.3 冷凍機の構成	3
2 核断熱消磁装置の設計	5
2.1 核ステージ	5
2.2 ヒートスイッチ	9
2.2.1 ヒートスイッチの性能	9
2.2.2 超伝導コイル	12
3 核冷凍機の性能評価	16
3.1 予冷時間	16
3.2 最低到達温度および昇温時間	18
4 温度測定	23
4.1 $^3\text{He}$ 融解圧温度計	23
4.1.1 原理	23
4.1.2 本体の設計・製作	26
4.1.3 ガスハンドリングシステム	28
4.1.4 キャパシタンスブリッジ	29
4.1.5 加圧テスト	29
4.2 Pt-NMR 温度計	33
5 まとめ	35
付録：超伝導シールド付き高均一度ソレノイドコイルの磁場分布計算	36
参考文献	40
謝辞	41

# 1 核断熱消磁法の原理

## 1.1 核冷却

核スピン  $I$ , 核磁気モーメント  $\mu = \mu_n g_n I$  の原子核の集団が  $n \text{ mol}$ , 磁場  $B$  中にあるとする。そのときの分配関数  $Z$  は

$$Z = \left[ \sum_{m=-I}^I \exp(-\mu_n g_n m B / k_B T_n) \right]^{n N_0} \quad (1.1)$$

と表せる。この分配関数からエントロピーは  $S_n = k_B \partial(T_n \ln Z) / \partial T_n$  により

$$\begin{aligned} \frac{S_n}{nR} = \frac{x}{2I} \coth \frac{x}{2I} - \frac{(2I+1)x}{2I} \coth \frac{(2I+1)x}{2I} \\ + \ln \left[ \sinh \frac{(2I+1)x}{2I} / \sinh \frac{x}{2I} \right] \end{aligned} \quad (1.2)$$

と求まる。 $R$  は気体定数,  $x = \mu_n g_n I B / (k_B T_n)$  である。比熱は  $C_n = T_n \partial S_n / \partial T_n$  より求められる。

高温近似  $\mu B \ll k_B T$  が成立する範囲内では

$$S_n = nR \ln(2I+1) - \frac{\Lambda(B^2 + a^2)}{2\mu_0 T_n^2} \quad (1.3)$$

$$C_n = \frac{\Lambda(B^2 + a^2)}{\mu_0 T_n^2} \quad (1.4)$$

$$\Lambda = nN_0 I(I+1) \mu_0 \mu_n^2 g_n^2 / (3k_B) \quad (1.5)$$

となる。ここで  $a$  は核スピン間に働く dipole 相互作用によって生じる内部磁場である。このように、エントロピーと比熱は  $(B/T)^2$  のみの関数になる。

以上の理論式より断熱消磁で到達できる核の最低温度を求める。初期条件が磁場  $B_i$ , 温度  $T_i$  のとき, 断熱消磁が理想的に行われる, すなわち  $S = \text{const.}$  として

$$T_f = \sqrt{\frac{B_f^2 + a^2}{B_i^2 + a^2}} T_i \quad (1.6)$$

となる。この式から最終磁場をゼロにしても温度は

$$T_{f,\min} \sim a T_i / B_i \quad (1.7)$$

までしか下がらない。理想的な断熱消磁の条件,  $S = \text{const.}$  は,  $B/T$  の比が一定であることを意味する。よって実験中の  $B/T$  の比は, 断熱消磁がどの程度理想的に行われているか, どの程度可逆過程であるかの尺度となる。

## 1.2 核冷凍

物質全体を冷却することを考えると、物質を核系、電子系、格子系に分けて考える必要がある。しかし、格子系のエントロピーは超低温領域では無視できるほど小さいので、以下の議論では核系と電子系のみを考える。核を冷却材として伝導電子系を冷やすことを核冷凍という。ここでの議論は核系と電子系とが厳密に分離できるとし、それぞれ熱平衡にあると仮定する。電子系の温度を  $T_e$ 、核系の温度を  $T_n$  とする。核系と電子系のエネルギーの緩和の速さはスピン格子緩和時間  $T_1$  で定義され、次式が成立する。

$$\frac{1}{T_n} = -\frac{1}{T_1} \left( \frac{1}{T} - \frac{1}{T_e} \right) \quad (1.8)$$

$T_1$  は核と電子の超交換相互作用によって決まり電子温度と次の関係がある。

$$T_1 T_e = \kappa \quad (1.9)$$

これをコリンガの関係という。 $\kappa$  はコリンガ定数である。

式 (1.8) と (1.9) より、

$$\frac{dT_n}{dt} = \frac{T_n}{\kappa} (T_e - T_n) \quad (1.10)$$

となる。

上記の緩和過程は、外部からのヒートリークがある状態で進行する。外部からのヒートリークは電子系を介して核系に吸収される。この核が電子から吸収する熱  $\dot{Q}_n$  と外部ヒートリーク  $\dot{Q}$  が成り立つと仮定して

$$\dot{Q}_n = \dot{Q} = C_n \dot{T}_n$$

式 (1.4) と (1.10) より

$$\dot{Q} = \frac{\Lambda(B^2 + a^2)}{\mu_0 \kappa T_n} (T_e - T_n) \quad (1.11)$$

あるいは、

$$T_e = T_n \left( 1 + \frac{\mu_0 \kappa \dot{Q}}{\Lambda(B^2 + a^2)} \right) \quad (1.12)$$

この式からヒートリークが定常的にあるときの電子の温度を求めることができる。



### 1.3 冷凍機の構成

核断熱消磁冷凍機の一般的な構成を図 1.1 に示す。核ステージの予冷には  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  希釈冷凍機を用いる。断熱消磁の開始温度をできる限り低くするために冷却力が大きいものが必要とされる。今回用いるのは、LeidenCryogenics 社製 DRS-1200 であり、冷却能力は 120mK において 1.2mW,  $^3\text{He}$  循環量 1.0mmol/s であり、大型の核ステージを冷却するのに十分である。 $^3\text{He}$  の循環は、排気能力の高いターボポンプとドライポンプで行い、循環系にポンプのオイルは混入しない。

核スピンを偏極させるための超伝導マグネットは Cryogenic 社製のもので、最大発生磁場は印加電流 72.5A で 9T である。実験空間にかかる磁場は補償コイルによって最大電流を流した状態でも 5mT 以下であり、実験に影響を及ぼさないようになっている。

ヒートスイッチは希釈冷凍機と核ステージとの熱伝導を制御する。核ステージの予冷時には高い熱伝導を有し、断熱消磁を実行する際には完全な断熱状態になる特性が必要とされる。核ステージのサポートには、アルミナやベスペルなどの熱絶縁材料を用い、核ステージへの熱流入を最小限にする。

冷却材となる核ステージは、これまでに多くの材質・形状が試されてきたが、現在では銅の一体の材料から削り出してつくる形式のものに定着しつつある。核ステージは、熱伝導を良くするために純度が高く、消磁による渦電流発熱が最小限になるように設計を行なう。

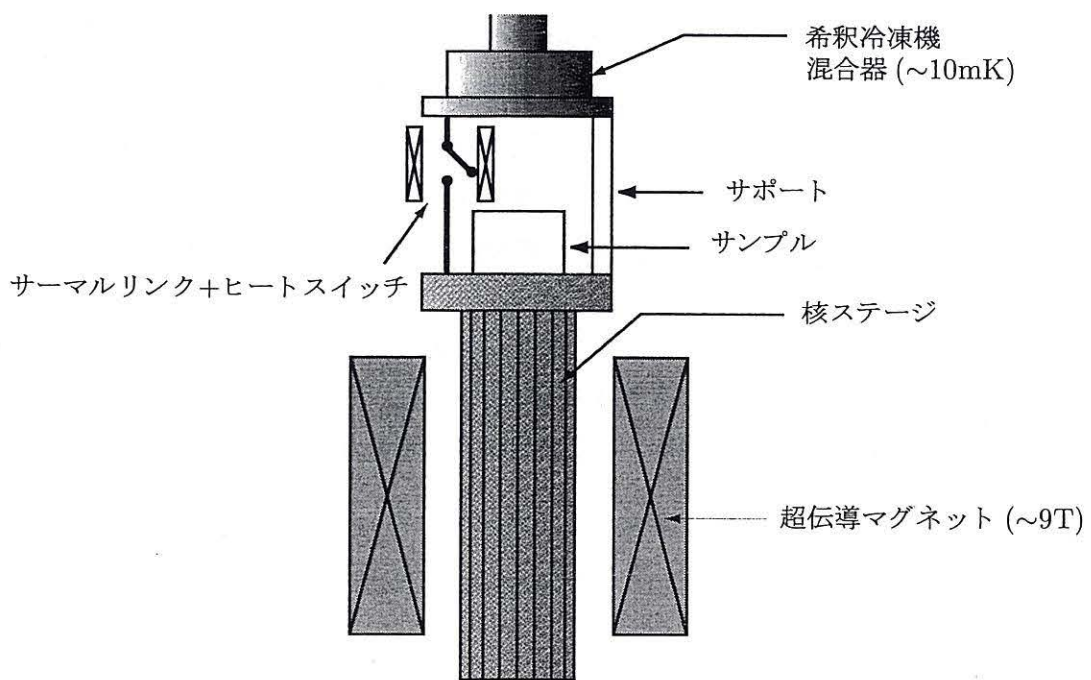


図 1.1 核冷凍機の模式図

## 2 核断熱消磁装置の設計

### 2.1 核ステージ

核ステージは、高純度の一体の銅材料から削りだして製作した。核ステージに要請される条件としては

1. 大きい Curie 定数
2. 小さい Korringa 定数
3. 高い熱伝導度
4. 超伝導転移をしない
5. 加工性に優れている
6. 小さい内部磁場

などがある<sup>3)</sup>。銅は 2. を除いて、上記の条件をほぼ満たしている。今回製作した核ステージは 総量は 230mol, 重量にして 14.6kg である。銅材料は日立電線 (株) のクラス 10FHC (純度 4N+以上) を使用した。形状は、高磁場が印加される部位には、マグネットの磁場スweepや、振動による渦電流発熱を極力抑える目的でスリットを入れた。その断面形状は、希釈冷凍機混合器 (Mixing Chamber:MC) に装着される放射シールドの内径 (100φ) に収まり、かつ高磁場中での有効な量が増すように充填率を大きくする必要があるのである。核ステージの全体図を図 2.1 に示す。スリットを入れた部位の断面積は、35.6cm<sup>2</sup> である。フィンの厚みは核ステージを強固にすると同時に、熱伝導を良くするためある程度厚くする必要があるのであるが、あまり厚くすると渦電流による発熱が大きくなってくる。長辺  $d$ , 短辺  $kd$ , 体積  $V$  の直方体の導体を用いた場合、渦電流による発熱は

$$\dot{Q}_{\text{eddy}} = \frac{\text{RRR}}{16\rho} V d^2 k^2 / (1 + k^2) \dot{B}^2 = a \dot{B}^2 \quad (2.1)$$

で与えられる<sup>4)</sup>。RRR は残留抵抗比である。今回設計した核ステージにおいて、断熱消磁する際の渦電流発熱を試算してみる。断面を 2.5mm 厚の矩形片に分割し、渦電流はそれぞれの矩形片に単独に流れるとする。RRR を典型的な値として 1000 とすると、式 (2.1) の核ステージの形状による因子  $a$  は  $0.82[\text{m}^2\text{kg}^{-1}\text{s}^3\text{A}^2]$  となる。マグネット電流のスweepプレートを 100min/A とすると、磁場をこの速度で 9T(72.5A) から 0T(0A) まで一度に消磁するときは、磁場中心で  $\dot{B} = 2.0 \times 10^{-5}[\text{T}/\text{sec}]$  になる。これらの値を式 (2.1) に代入すると、核ステージ全体での発熱量は  $\sim 6.7\text{nW}$  という概算になる。この渦電流発熱の試算に基づいて断熱消磁を行うときの最低到達温度の概算は、3.2 節に述べる。

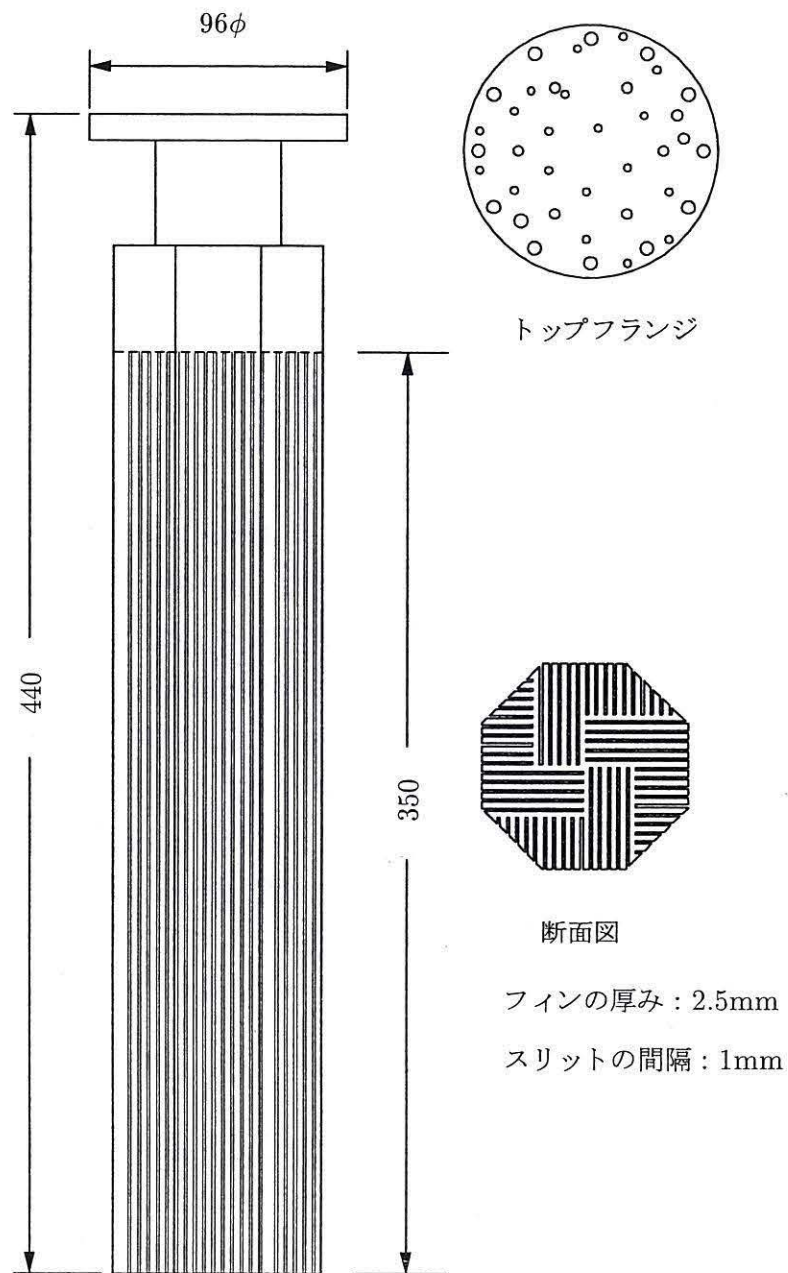


図 2.1 核ステージ全体図

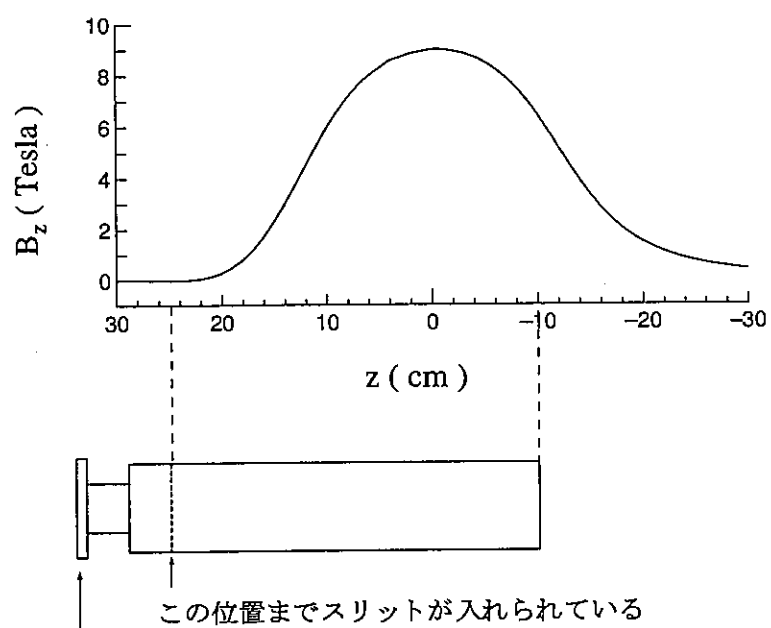
超伝導マグネットの磁場分布は図 2.2 のようになっている。実際に最大磁場 9T が有効にかかる核スピンの量は少なくなる。エントロピーは  $nB^2$  に比例するので次式より有効モル数  $n^*$  を求める。

$$n^* B_{\max}^2 = \int \rho B(z)^2 dV \quad (2.2)$$

$\rho$  は単位体積当りのモル数である。核ステージの底と MC の放射シールドとの間のクリアランスを 2cm とり、図 2.2 のように磁場分布の -10cm~25cm までを上式により計算すると、9T 中の有効モル数は約 93mol (5.9kg) である。

実験スペースとなるトップフランジは 96φ あり、サポート、ヒートスイッチ、温度計、実験セルを載せるための取付穴を開けてある。また、実験スペースを大きくするために、この上に別のフランジを重ねることが出来るようにした。具体的には実験フランジを核ステージのフランジとしっかりと密着させるために、M5 の 12 等配と M4 の 6 等配を開けてある。実験空間の高さは混合器の底からこのフランジまでで、約 400mm ある。

核ステージの低温での熱伝導を良くする目的でアニールを行なった。アニールを行なう電気炉は東京大学物性研究所のものを借用した。アニール条件は酸素を  $1 \times 10^{-4}$  Torr 程度フローさせながら、900℃ で 72 時間行なった。この核ステージの RRR 測定は行なっていないが、他の研究機関でほぼ同一の条件で行なったものや、過去の記録や文献などから、1000~2000 程度と推定される。



実験空間：5mT 以下に補償

図 2.2 超伝導マグネットの磁場分布と核ステージとの位置関係

## 2.2 ヒートスイッチ

ヒートスイッチは、冷凍機において装置間を熱的につないだり、切り離したりするためのものである。断熱消磁においては、予冷時間の短縮と良好な断熱条件を得るために、特に重要な役割を担う。1K以下の低温では超伝導のヒートスイッチを用いる。これは熱伝導の比が超伝導状態のときと常伝導状態のときとで大きいことを利用している。超伝導状態のときは、大部分の電子がエントロピーゼロの状態にあり熱の担体とはならない。一方、熱を運ぶことの出来る励起電子の数は温度の低下とともに指数関数的に減少していく。超伝導転移温度の十分の一以下の低温では  $T^3$  に比例するフォノンの熱伝導  $k_{ph}$  が支配的になり、温度の低下とともに急速に小さくなっていく。ヒートスイッチに用いられる超伝導材料としては、スイッチの開と閉の間の熱伝導度の比が大きいという特性が求められ、材質は Al, In, Pb, Sn, Zn<sup>5, 6</sup>)などが用いられる。今回は、In ( $T_c$ : 3.4035K,  $H_c$ : 29.3mT)を用いたヒートスイッチを採用した。Inを用いる利点は、融点(156℃)が低く、銅または銀のサーマルリンク材に In 自体をハンダ付けすることができるため、製作が比較的容易なことである。また、Inは室温付近でもアニール効果があり、特別な熱処理をしなくても RRR が他の材料に比べて高い、すなわち常伝導状態での熱伝導が良いという利点がある。

ヒートスイッチの基本設計を図 2.3 に示す。In は、 $5 \times 5 \times 1\text{mm}^3$  の薄片を 2 枚用いる。In 薄片はサーマルリンク材のスリット部に挿入し、ハンダ付けを行なう。製作はリンク材にネジを切っておき、ネジ形状の鍍先を持ったハンダ鍍で加熱する。リンク材の温度は熱電対でモニターする(図 2.4)。製作の要領としては、ハンダ付けを行なう箇所をあらかじめ In でコーティング(ハンダメッキ)しておくときれいにハンダ付けができる。

超伝導ヒートスイッチの性能は、スイッチ比  $k_n/k_s$  で示される。超伝導ヒートスイッチには、 $k_n$  を大きくするために高純度( $\sim 6N$ )な金属材料が用いられる。形状はフォイル状にする。これは、フォノンの平均自由行程  $l$  - 高純度な試料では最大で試料の厚さ程度 - を小さくする、すなわち  $k_{ph} = 1/3Cvl$  を小さくするためである。以下に In ヒートスイッチを設計するための性能評価を行う。

### 2.2.1 ヒートスイッチの性能

常伝導状態の In の熱伝導度をウィーデマン・フランツ則から見積もると、 $RRR \sim 10^4$  で  $k_n \sim 4000T[\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}]$  となる。超伝導状態の熱伝導は、フォノンによる熱伝導が支配的であるとして、 $k_s \sim k_{ph} = (1/3)Cvl$  で見積もる。In においては、 $C \sim 98T^3[\text{Jm}^{-3}\text{K}^{-1}]$ ,

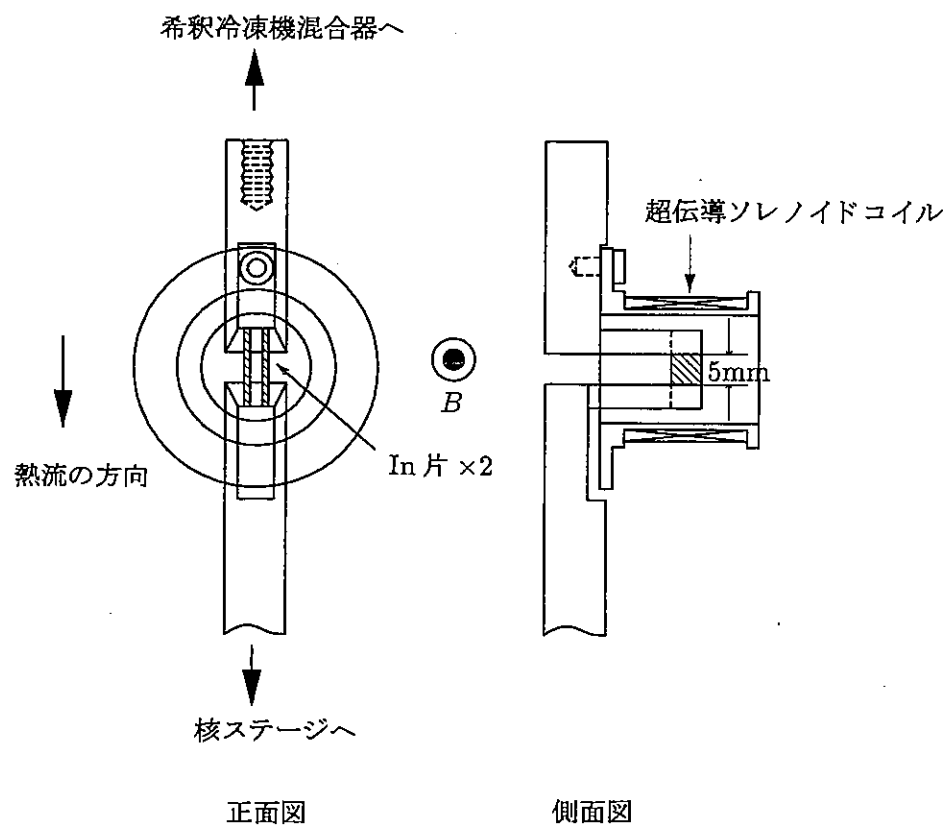


図 2.3 ヒートスイッチの形状

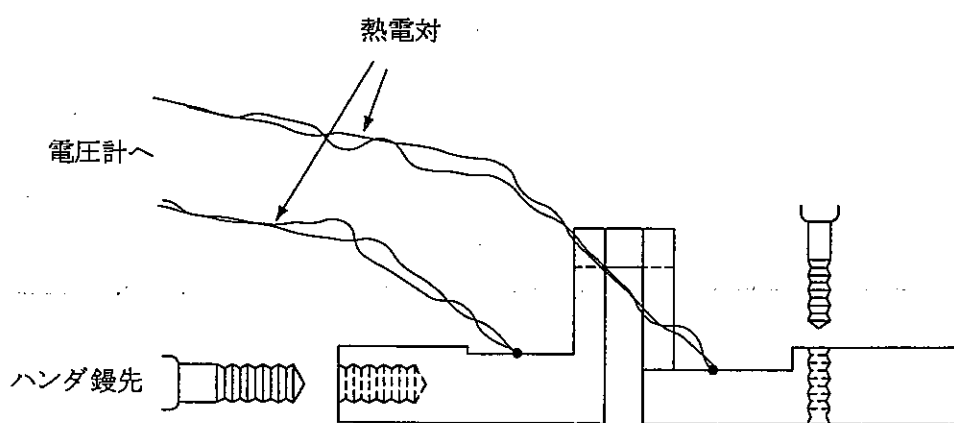


図 2.4 In のハンダ付け



$v \sim 2000\text{m/sec}$ ,  $l=1\text{mm}$  として

$$k_s = \frac{1}{3} \times 98T^3 \times 2000 \times 1 \times 10^{-3} \simeq 65T^3 [\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}]$$

以上からスイッチ比は

$$k_n/k_s \sim 60T^{-2}$$

となる。これは 10mK において、超伝導の熱伝導率が常伝導に比べて  $10^6$  倍小さいことを与える。次にスイッチが開のときの熱流量  $\dot{q}$  を計算する。これは核ステージへのヒートリークとなるので、最小限に抑えなければならない。熱伝導率  $k_s$  より

$$\begin{aligned} \dot{q} &\sim \frac{S}{l} \int_{T_B}^{T_A} k(T) dT & T_A > T_B \\ &= \frac{5 \times 1 \times 10^{-6}}{5 \times 10^{-3}} \int_{T_B}^{T_A} 65T^3 dT = 6.5 \times 10^{-2} \left[ \frac{T^4}{4} \right]_{T_B}^{T_A} \end{aligned}$$

$T_A$  を MC の温度で 10mK,  $T_B$  を核ステージの温度で  $100\mu\text{K}$  とすると

$$\dot{q} \sim 6.5 \times 10^{-2} \times \frac{1}{4} [(10^{-2})^4 - (10^{-4})^4] \sim 1.6 \times 10^{-10} = 160\text{pW}$$

となり、In 片二枚で 0.33nW ということになる。しかし以上の計算は、In 片単体のみについてであり、In がサーマルリンク材にハンダ付けされるとき境界面での抵抗や、リンク材自体の熱伝導率等を考慮すると上記の計算とは異なってくる。

そこでこの境界面での抵抗を見積もるために、実際に製作したヒートスイッチについて、RRR 測定を行なった。形状は  $5 \times 5 \times 1\text{mm}^3$  の In 片が二枚、端を銀のサーマルリンクにハンダ付けしたもので、全長は約 6cm である。抵抗値は 4.2K で  $40\text{n}\Omega$ , RRR は約 3000 であった。この測定からサーマルリンク全体での熱伝導度をウィーデマン・フランツの法則より見積もる。

$$K = \frac{L_0 T}{R} = \frac{2.5 \times 10^{-8}}{40 \times 10^{-9}} \simeq 0.6T [\text{W/K}] \quad (2.3)$$

今回の冷凍機での実験空間は 40cm 程度あるので、これにサーマルリンクの延長として、 $10\phi$  の銀ロッドを 30cm 追加し、両端をネジ止めする場合のサーマルリンク全体を考えてみる。この銀の RRR を 1000 とすると、抵抗値は  $60\text{n}\Omega$  となる。ネジ止めの部分の接触抵抗は、金メッキした面をステンレスネジで 4～5Nm 程度のトルクで固定する場合、 $10\text{n}\Omega$  程度のオーダーとなる<sup>7,8)</sup> (接触面積  $1.64\text{cm}^2$ )。よってサーマルリンク全体での抵抗値は

$$10\text{n}\Omega \times 2 + 60\text{n}\Omega + 40\text{n}\Omega = 120\text{n}\Omega$$

全体での熱伝導度は

$$K_{\text{tot}} = \frac{2.5 \times 10^{-8}}{120 \times 10^{-9}} \sim 0.2T[\text{W/K}] \quad (2.4)$$

となる。

## 2.2.2 超伝導コイル

常伝導と超伝導の切替は、ソレノイドコイルを用いて行なう。スイッチを開にしたとき、超伝導体に磁束がトラップされると、磁束周辺の常伝導部分に熱が流れて完全な断熱状態にならない。そのため磁場の方向は、熱流に対して垂直にする（図 2.3）。また磁束がトラップされても、それが最小限であるように、試料の厚み部分が磁場方向に対して垂直になるようにする。ソレノイドコイルは  $0.12\phi$  の CuNi クラッドの超伝導線を用いて製作した。約 2000 ターン巻いて、コイル定数は約  $90\text{mT/A}$  である。このコイルの磁場分布をホール素子 (Matsushita OH002 : ホール定数  $0.1266\text{VT}^{-1}\text{mA}^{-1}$  at  $4.2\text{K}$ )<sup>9)</sup> を用いて測定した。その分布は図 2.5 のようになっている。

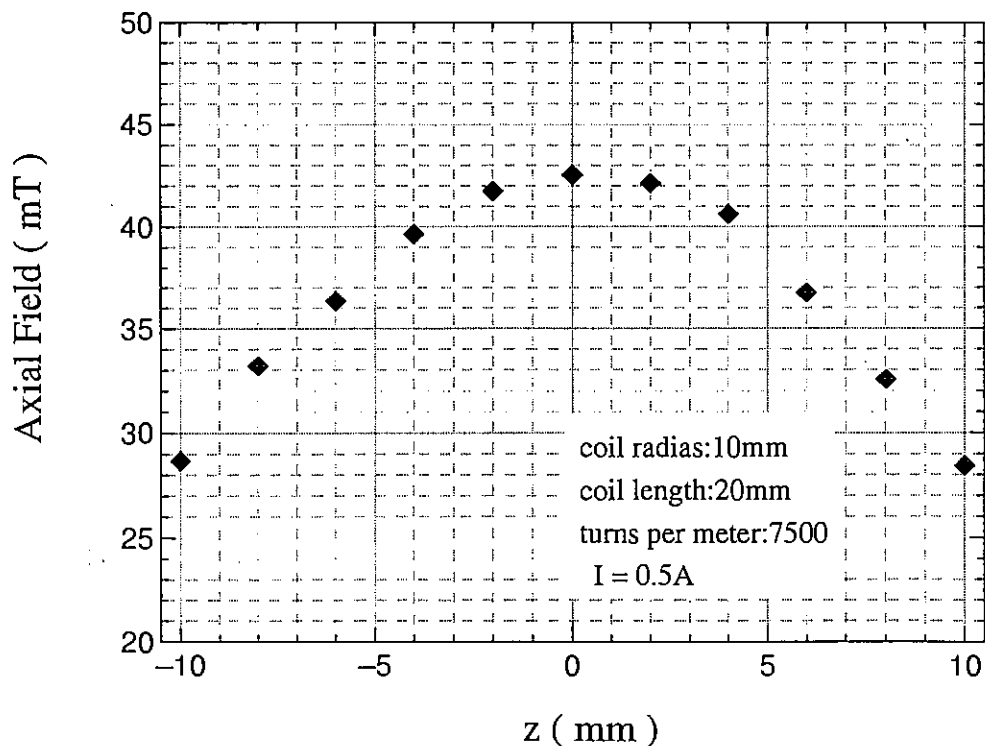


図 2.5 ソレノイドコイルの磁場分布

### [超伝導永久電流モード]

超伝導状態の回路は抵抗がないために、電流を半永久的に減衰なしに流すことが可能である。これを永久電流モードという。超伝導ソレノイドコイルを永久電流モードで使用すると、通常の電源に比べてコイルに流れる電流の変動が極めて小さく安定な磁場が実現される。このことは時間的安定度が必要とされる NMR 測定用の静磁場コイルの場合、特に重要である。また、大電流を流す必要のある核ステージの励磁用マグネットは、液体 He の消費量を抑えるため永久電流モードで磁場を安定化させる。

永久電流回路の模式図を図 2.6 に示す。回路は超伝導ソレノイドコイルの巻線の両端を超伝導線で短絡させた閉回路に、ヒーターとして抵抗線を巻き付けたものである。この超伝導線にヒーターを巻き付けた素子をパーシステントスイッチという。以下に永久電流回路の操作手順を説明する。

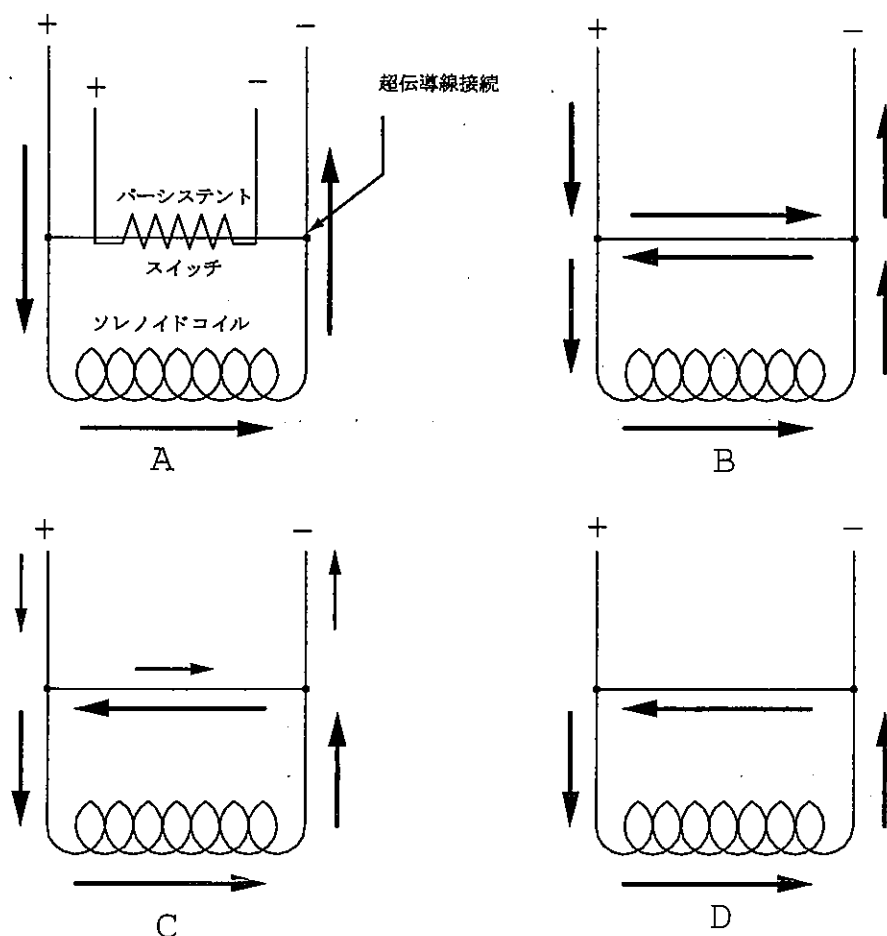


図 2.6 パーシステントモード

回路はすべて液体ヘリウムに浸かっているとす。永久電流を流すには、まずパーシステントスイッチを ON, すなわち抵抗線に電流を流して、ヒーターの発熱により超伝導状態を破る。常伝導部分には電流は流れずに、コイルに全て流れる。この状態で電流を設定値まで上げていく (A)。電流が設定値に達したら、パーシステントスイッチを OFF, ヒーターに流す電流をゼロにする。スイッチは超伝導に戻り、電流はスイッチ部分も流れる (B)。このとき電源からの電流とマグネットを流れる電流が逆向きで等しいので、スイッチ部分にはトータルで電流は流れない。しかし、電源の電流を落としていくと、スイッチ部分の電流は増加していく (C)。最後には、電源を完全に切っても、コイルには永久電流が流れるようになる (D)。以上の手順を逆にたどると、コイルの永久電流を取り除くことができる。

本研究では、ヒートスイッチや NMR 用静磁場コイルを永久電流モードで使用するために、パーシステントスイッチと超伝導接続の設計・試作を行い、動作確認を行った。パーシステントスイッチ本体は、スタイキャスト 1266 で製作した (図 2.7)。抵抗線は、マンガニン線 ( $57.66\Omega/m$ ) を用い、超伝導線に約 16cm, 密に巻き付け、本体に入れてスタイキャストを流し込んで固めた。当初、このスイッチはバキューム管内に装着する予定で、テストもバキューム管のフランジに固定して行なった。しかし、真空中ではスタイキャスト自体の熱伝導が悪くて、ヒーターに流す電流を OFF にしてもなかなかスイッチが切れなかった。バキューム管の外に出して、液体ヘリウムに直接浸けると速い応答が得られるようになった。このスイッチでは、マンガニン線を巻いた超伝導線部分を全て常伝導にするには、100mA 程度電流を流せばよい。

永久電流回路では、超伝導線同士の接続が必要である。超伝導線は CuNi クラッドの NbTi 単芯線である。CuNi はハンダで接続できるが、通常のハンダによる接続では抵抗が生じてしまい、永久電流モードにすることが出来ない。しかし、芯線である NbTi ではハンダがつかない。よって NbTi の芯線同士の接続には、別の手段が必要である。今回その手段の一つとして、芯線の圧着方式を試してみた。これは CuNi を除去した芯線同士をより合わせ、それを銅管に挿入して、銅管自体をプレスする方法である。絶縁皮膜と CuNi を硝酸できれいに取り除いた後、長さ約 5cm, 内径  $1\phi$  の銅管により合わせた超伝導線を入れて約 300 気圧でプレスした。この接続を液体ヘリウムに浸けてテストしたところ、電流は接続部を通してきちんと流れ、3A まで電流を上げても超伝導接続は破れなかった。ヒートスイッチ用の永久電流回路では通電量は最高でも 1A 程度なので、これで十分である。NbTi 複合多芯線のパーシステントスイッチの作り方については、文献に詳しい<sup>10)</sup>。

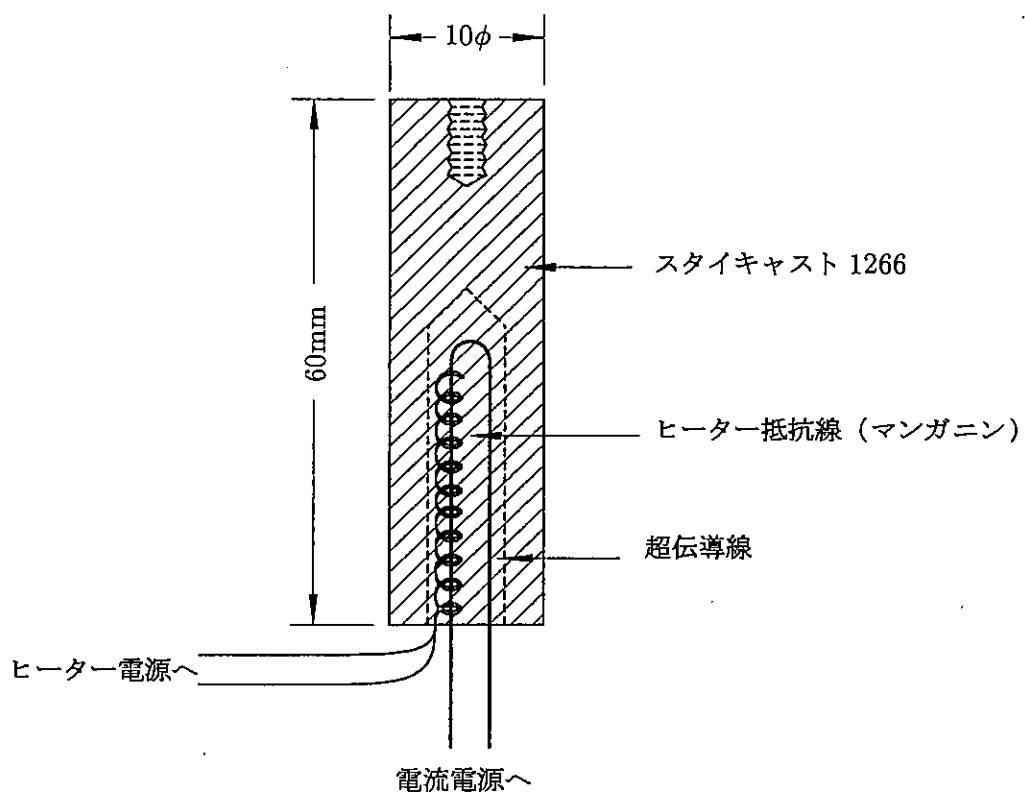


図 2.7 パーシステントスイッチ

### 3 核冷凍機の性能評価

以下に今回設計した核断熱消磁装置の性能を概算を行なう。

#### 3.1 予冷時間

核ステージの予冷時間の短縮にはいくつかの条件があるが、なによりも希釈冷凍機の冷却能力に負うところが大きい。その次にサーマルリンクが高い熱伝導を持つことが条件である。これは単にヒートスイッチ自体の熱伝導が高いということ以外にも、サーマルリンクを混合器や核ステージにネジで機械的に連結する箇所の熱抵抗が十分小さくなるように配慮するという事を含んでいる。予冷時間の見積もりには、単純に図 3.1 のようなモデルを考える。熱流  $\dot{q}$  があるとき、

$$\dot{q} = aT^{-2} \frac{dT}{dt} = \frac{1}{2} K (T^2 - T_{MC}^2) = bT_{MC}^2 \quad (3.1)$$

の関係が成り立つ。ここで係数  $a$  は、核比熱の係数  $a = n^* \frac{\lambda}{\mu_0} B^2$  で、 $b$  は希釈冷凍機の冷却能力  $\dot{q}_{MC} = bT_{MC}^2$  の係数である。式 (3.1) を時間について積分すると、

$$\left[ \frac{1}{T^3} \right]_{T_i}^{T_f} = \frac{3Kb}{a(2b+k)} t \quad (3.2)$$

が導かれる。上式より予冷中の核ステージの温度は  $t^{-1/3}$  の時間依存性を示す。冷却能力を 1.2mW at 120mK とすると、 $b = 0.09[\text{W}/\text{K}^2]$  となる。核ステージは有効モル数  $n^* = 93\text{mol}$  を 9T 励磁しているとして  $\lambda/\mu_0 = 3.2 \times 10^{-6} \text{J} \cdot \text{K}/\text{mol}$  より

$$a = 93 \times 3.2 \times 10^{-6} \times 9^2 \sim 2.4 \times 10^{-2} [\text{JK}]$$

となる。ヒートスイッチ+サーマルリンクの熱伝導度  $K$  は、2.2.1 節の計算値  $K = 0.2T[\text{W}/\text{K}]$  を用いる。これらの値を用いて  $T=100\text{mK}$  から  $10\text{mK}$  まで 9T 中の  $n^* = 93\text{mol}$  の核ステージを冷却するのに要する時間は、

$$\left( \frac{1}{10^{-2}} \right)^3 - \left( \frac{1}{10^{-1}} \right)^3 = 3 \times \frac{0.09 \times 0.2}{2.4 \times 10^{-2}(0.18 + 0.2)} t$$

$$t = 168720\text{sec} \sim 47\text{h} \sim 2\text{day}$$

のように求まる。

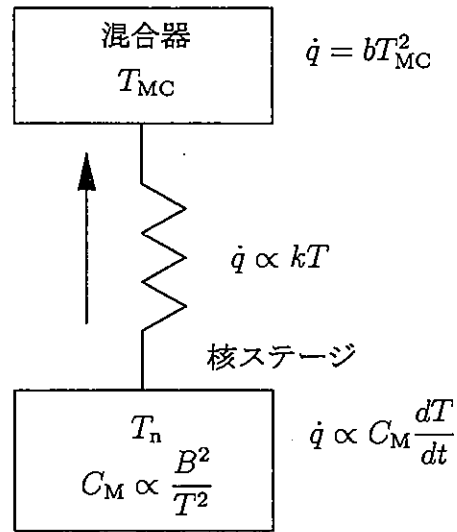


図 3.1 核ステージの予冷

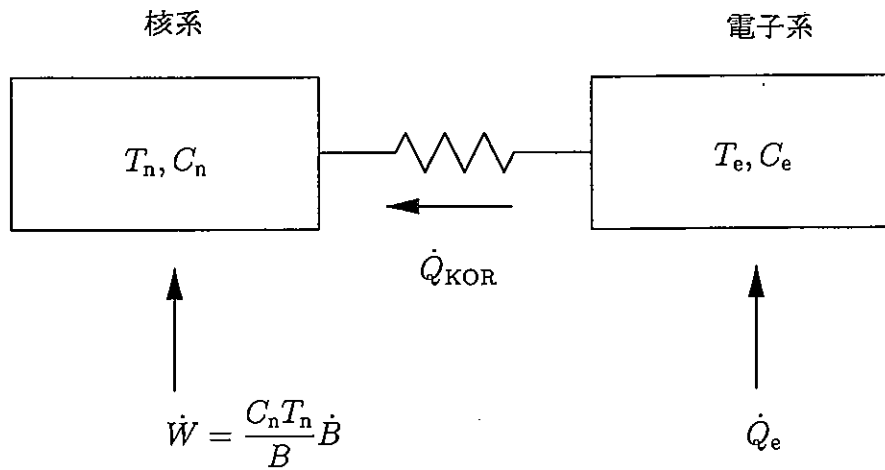


図 3.2 核系と電子系の関係

### 3.2 最低到達温度および昇温時間

断熱消磁中，核系，電子系の最低到達温度に影響を及ぼすのは，渦電流発熱とヒートリークである。図 3.2 に関係した，核系，電子系の方程式は以下のように書き下せる<sup>11)</sup>。

$$C_n dT_n/dt = \dot{Q}_{\text{KOR}} - \dot{W} \quad (3.3a)$$

$$C_e dT_e/dt = \dot{Q}_e - \dot{Q}_{\text{KOR}} \quad (3.3b)$$

$\dot{W}$  は核の冷却力， $\dot{Q}_{\text{KOR}}$  は核系と電子系の温度差による熱流， $\dot{Q}_e$  は電子系へのヒートリークを表し，それぞれ以下のようになる。

$$\dot{W} = \frac{C_n T_n}{B} \dot{B} = \frac{\lambda B}{\mu_0 T_n} \dot{B} \quad (3.4a)$$

$$\dot{Q}_{\text{KOR}} = C_n T_n (T_e - T_n) / \kappa \quad (3.4b)$$

$$\dot{Q}_e = \dot{Q}_{\text{ext}} + \dot{Q}_{\text{eddy}} \quad (3.4c)$$

$$\dot{Q}_{\text{eddy}} = a \dot{B}^2 \quad (3.4d)$$

$\dot{Q}_{\text{eddy}}$  の  $a$  は式 (2.1) の形状因子である。コリンガの定数  $\kappa$  は銅に対して  $1.1 \text{sec} \cdot \text{K}$  とおく。核比熱  $C_n$ ，電子比熱  $C_e$  はそれぞれ次の値になる。

$$C_n = \frac{\lambda B^2}{\mu_0 T^2} = 3.2 \times 10^{-6} B^2 / T^2 [\text{J/K}] \quad (3.5)$$

$$C_e = \gamma T = 6.95 \times 10^{-4} T [\text{J/K}] \quad (3.6)$$

これらの式を用いて，断熱消磁中の核系，電子系の温度の時間発展を計算する。

式 (3.3) の時間発展を求めるにはオイラー近似を用いて， $t_0$  から  $t_0 + \delta t$  まで，それぞれの系の温度を計算する。

$$T(t_0 + \delta t) = T(t_0) + (\dot{Q}_0 / C_0) \delta t \quad (3.7)$$

ここで， $\dot{Q}_0$ ， $C_0$  は時間  $t_0$  における熱流量と系の比熱である。この近似方法は  $\dot{Q}_0 \delta t / C_0 \ll T(t_0)$  の条件を満たすことが必要である。核系に対しては  $\delta t$  を  $100 \text{sec}$  としても，この条件を満足できるが，電子系では  $C_e$  が非常に小さいことから  $10^{-3} \text{sec}$  以下の増分でなければならない。このような非常に短い時間間隔では，計算時間は実際の断熱消磁の実験時間と同程度になってしまい，数値計算をする意味がなくなる。

この問題は， $C_e$  が小さいことを逆に利用すると，単純な近似計算に置き換えることができる。 $C_e$  は  $C_n$  に対して非常に小さいので， $T_e$  は全ての時間において熱平衡にある，すなわち (3.3b) の右辺を 0 と置くことができる。よって，計算ではまず核系の温度  $T_n$  を求め，



次に

$$\begin{aligned} \dot{Q}_e - \dot{Q}_{\text{KOR}} &= 0 \\ \Rightarrow T_e &= T_n \left( 1 + \frac{\mu_0 K}{\Lambda B^2} (\dot{Q}_{\text{ext}} + \dot{Q}_{\text{eddy}}) \right) \end{aligned} \quad (3.8)$$

から電子系の温度  $T_e$  を求める。これを 1 ステップとし、最終磁場まで繰り返す。

上記の計算において、パラメーターは最終磁場  $B_f$ 、消磁速度  $\dot{B}$ 、ヒートリーク  $\dot{Q}_{\text{ext}}$ 、渦電流発熱  $\dot{Q}_{\text{eddy}}$  である。ヒートリークの原因は、放射熱や振動による発熱、サポートからの熱流入、核ステージ内部での熱発生などが考えられるが、どれも単独に分離できる性質のものではない。冷凍機を電磁波シールドルームに入れる、空気バネ式除振台に設置するなどのヒートリーク対策を施しても、通常の冷凍機にはトータルで 1 ~ 10nW 程度のヒートリークが残存する。

図 3.3 に初期条件を  $T_i = 10\text{mK}$ 、 $B_i = 9\text{T}$  とおき、最終磁場  $B_f = 20\text{mT}$  まで消磁したときの計算結果を示す。ヒートリークは 1 モル当たりで計算し、核ステージ全体に対して  $\dot{Q} = 1\text{nW}$ 、これが核ステージに等分配されるとして  $\dot{q} = \dot{Q}/N = 4\text{pW}$  ( $N$ : 総モル数 230mol) とする。渦電流発熱  $\dot{Q}_{\text{eddy}} = a\dot{B}^2$  の値は、2.1 節の概算値  $a = 0.82$  に消磁速度  $\dot{B}$  をパラメータとして与えた。計算結果から、断熱消磁の速度を遅くすることにより、断熱条件である  $B/T = \text{const.}$  に近づくことが分かる (図 3.3(b))。

以上の計算は、最も冷却される磁場中心の核系、電子系に対して行なった。実際には超伝導マグネットの磁場分布に従って、核ステージの各部分で断熱消磁の条件が異なり、核の冷え方に差ができる<sup>12)</sup>。この冷え残った核の温度は、電子の熱伝導を介して磁場中心への熱流入となり、これがさらに  $B/T$  の比を悪くする。温度差がつくことによるエントロピーロス、消磁を数段階に分け、それぞれの段階で核ステージの熱平衡を待ちながら行なうと、最小限に抑えられる。

次に、断熱消磁後の核ステージの低温保持時間を計算した。これは実験継続時間の目安を与えるものである。保持時間の見積に関しては、上記の式で  $\dot{W}$  は消磁を止めるので 0、 $\dot{Q}_{\text{eddy}}$  も 0 となる。核ステージの温度はヒートリークのみによって上昇していく。ただし、ヒートリークは核ステージ全体に対しての値で計算し、それが最終磁場  $B_f$  中の有効モル数 ( $n^*$ ) に対して流入すると考える。この計算結果を図 3.4 に示す。計算結果からはヒートリークが 1nW のときには最終磁場が 20mT で 57 日、1mK 以下を保つことができる。これに対して、ヒートリークが 10 倍になった場合には 20mT では 6 日しか持たない。しかし、この場合でも最終磁場を 100mT に抑えて核比熱を増大させることにより、最低温度は高くなってしまいが、保持時間は 1 ヶ月近くにまで延びる。

以上の数値計算から、適切な消磁速度と最終磁場を設定することで、今回設計した核ス

ページでは  $100\mu\text{K}$  以下の最低温度を実現でき、また  $1\text{mK}$  以下の超低温を 1 ヶ月程度保持できることが分かった。実際の断熱消磁において可変な量は最終磁場の値と消磁速度のみなので、実験の環境や目的に合わせて最適な値を求める必要がある。

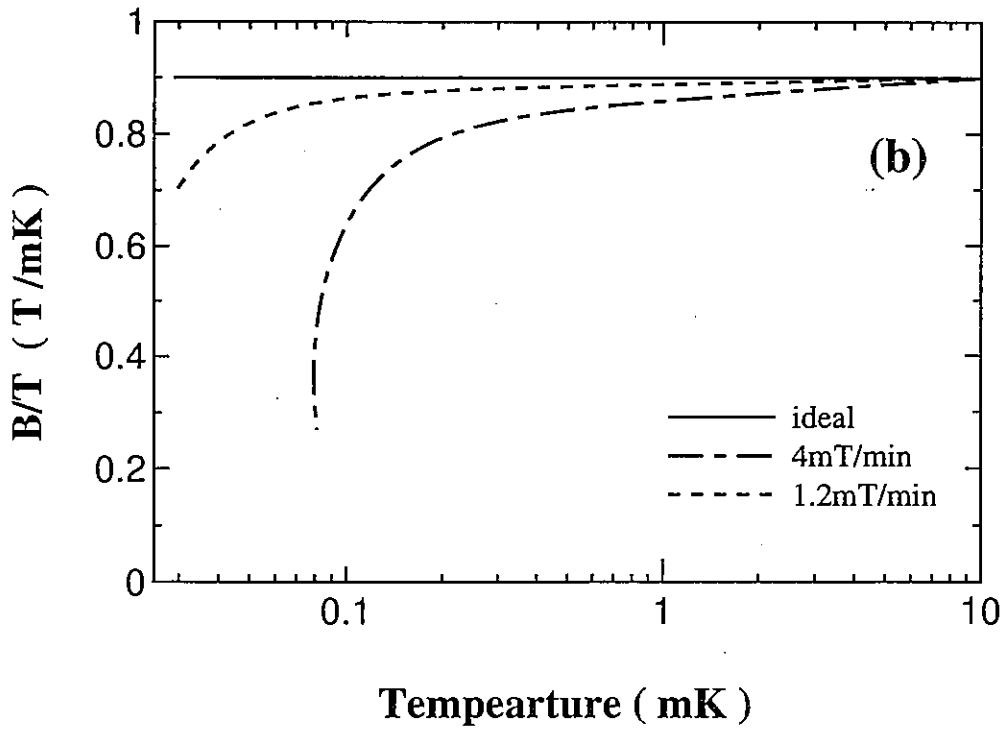
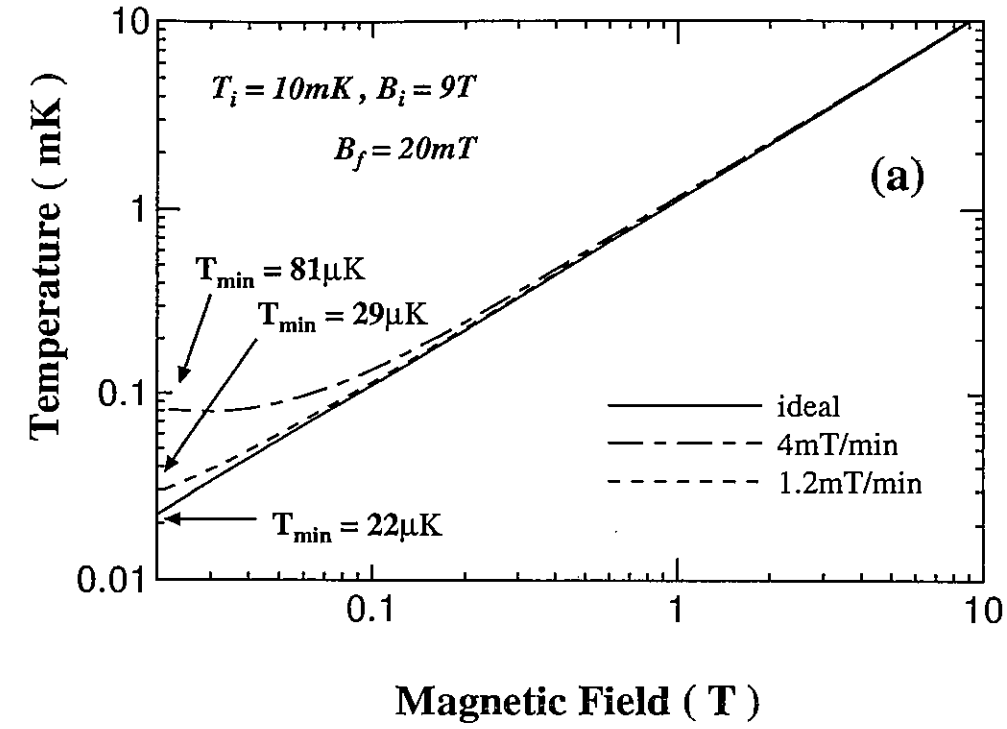


図 3.3 核断熱消磁 (a) 消磁速度を変えたときの電子系の温度 (b) B/T 比

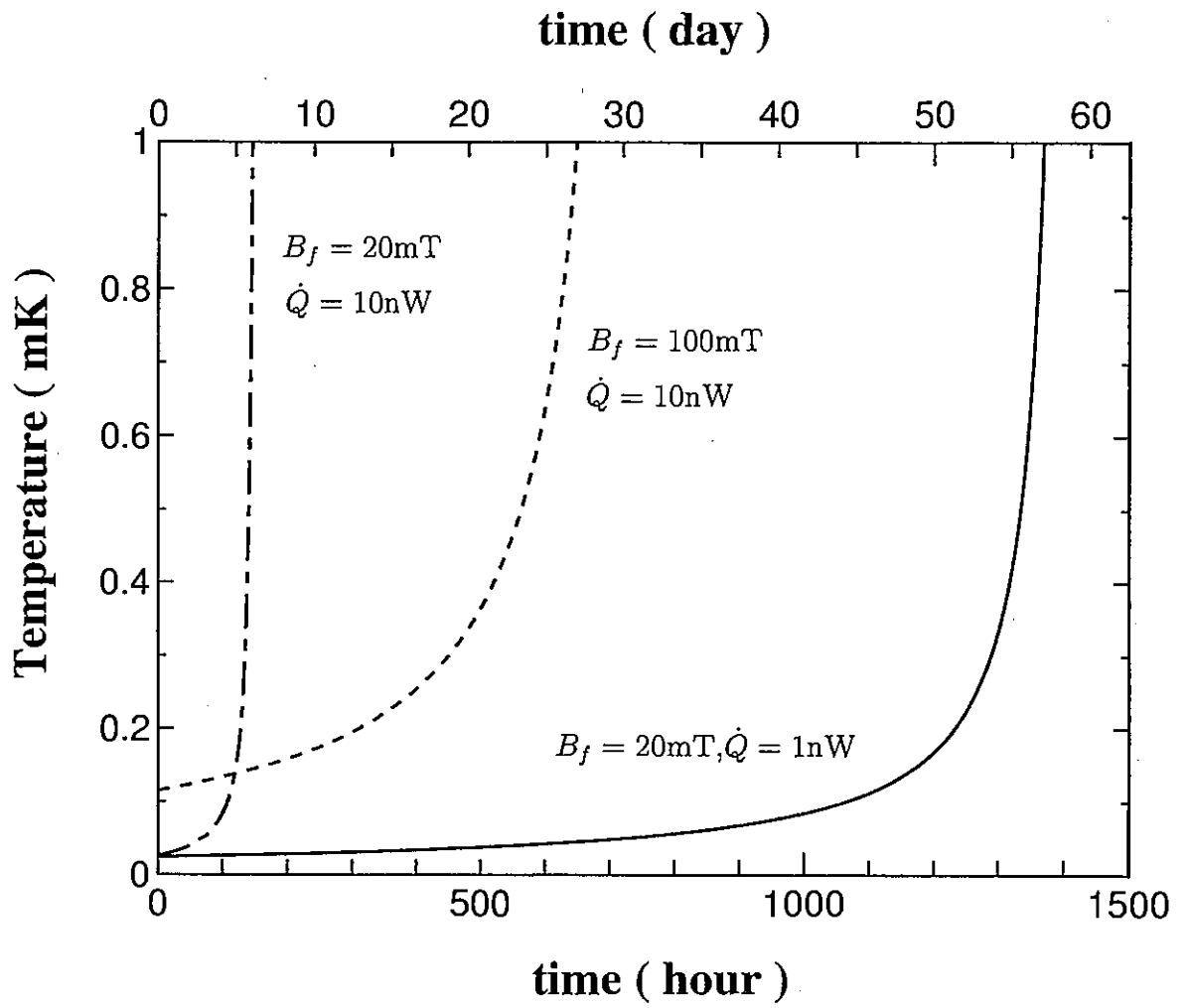


図 3.4 消磁完了後の温度上昇

## 4 温度測定

温度測定の基本は、何らかの物理法則によって温度と結びついている物理量を測定することである。一般的に温度計に要請される条件として、(1) 物理量  $x$  の測定が容易であること、(2)  $x(T)$  の温度依存性がはっきりと分かっており、なるべく簡単な物理法則によって温度に換算できること、(3) 感度  $(\Delta x/x)/(\Delta T/T)$  が高いこと、(4) 短い時間で熱平衡になること、(5) 測定によって生じる発熱が小さくて済むこと、などが上げられる。条件 (4) を満たすには、温度計自体の比熱が小さく、熱伝導が高く、周囲の環境とよく熱接触していることが必要である。(5) は超低温における実験で最も重要な条件となる。

### 4.1 $^3\text{He}$ 融解圧温度計

#### 4.1.1 原理

現在、ミリケルビン領域で温度を正確に測れる温度計としては  $^3\text{He}$  融解圧温度計が最も信頼性がある<sup>13)</sup>。 $^3\text{He}$  融解圧温度計 (Melting Curve Thermometer:以下 MCT) は、大体 750mK から 1mK までの温度範囲で、固液共存状態にある  $^3\text{He}$  の融解圧力が大きな変化を示すことを利用している。MCT は雑音や、 $^3\text{He}$  に含まれる不純物の影響による温度の不定性がほとんどなく、再現性にも優れておりミリケルビン温度領域の温度計として世界標準になりつつある。

1K 以下の  $^3\text{He}$  の融解圧曲線を図 4.1 に示す。融解圧共存曲線上ではクラウジウスークラペイロンの式が成立する。

$$\frac{dP}{dT} = \frac{S_L - S_S}{V_L - V_S} \quad (4.1)$$

ここで  $S$ ,  $V$  はそれぞれモルエントロピー、モル体積を表し、添字 L と S は液相と固相を表す。1K 以下の液体  $^3\text{He}$  はフェルミ縮退しており、エントロピーは  $T$  に比例して小さくなる。これに対し、固体  $^3\text{He}$  のエントロピーは核スピン 1/2 の自由度にのみ依存し、 $R \ln 2$  でほぼ一定となる。両相のエントロピーは  $T = 315.8 \pm 0.5\text{mK}$  (M 点) で等しくなり、融解圧曲線は極小点をもつ。M 点以下では液相と固相のエントロピーとが逆転し、曲線は負の傾きをもつ。固体  $^3\text{He}$  の核スピンは交換相互作用のために  $T_S = 0.93 \pm 0.01\text{mK}$  (S 点) で反強磁性状態に転移する。この転移に伴い固体のエントロピーは大きく減少し、温度計としての感度を失う。この理由から MCT の動作下限温度は大体 1mK となる。融解圧曲線上には M 点と S 点以外にも超流動 A 転移点 A (3.4340MPa, 2.48mK), B 転移

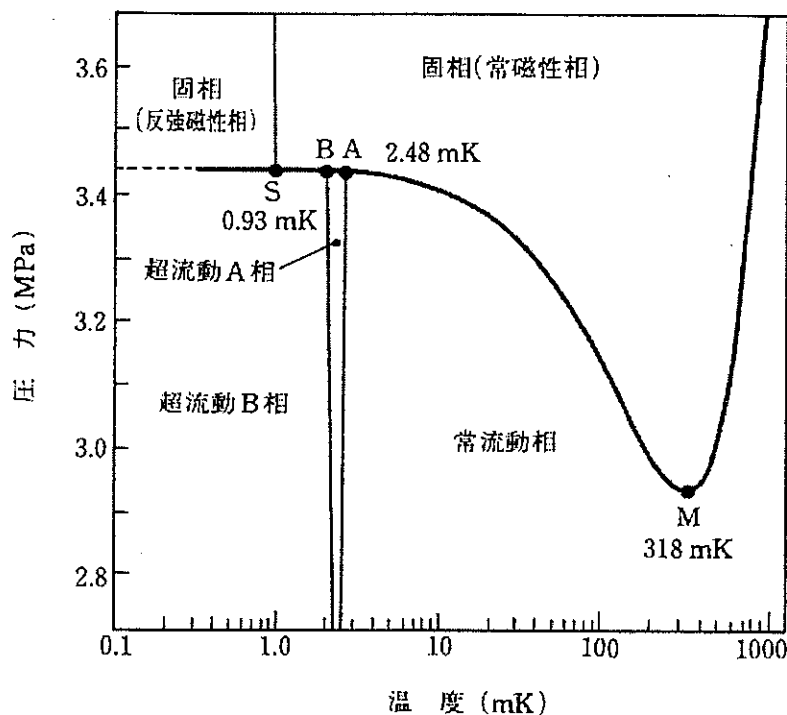


図 4.1  $^3\text{He}$  融解圧曲線

点 B (3.4360MPa, 1.93mK) がある。これら 4 つの定点は相転移に伴い、温度を変えたとき融解圧の時間変化に不連続点として観測できる。これを圧力校正時の温度定点としても利用できる。

$^3\text{He}$  の圧力は、最大 4MPa までの加圧範囲で弾性変形を示す金属材料を用いて、圧力変化による材料の変位を対向している固定電極との間のキャパシタンス変化として検出する。これは容量型歪み圧力計 (Stray-Adams 型圧力計) と呼ばれ、 $\Delta P = 0.1 \sim 1\text{Pa}$  程度の高精度測定が可能である。1Pa の圧力分解能は  $^3\text{He}$  融解圧曲線から、1mK ~ 100mK の範囲で約  $1\mu\text{K}$  の温度分解能に相当する。弾性変形をする下部の金属はダイアフラムと呼ばれ、その半径、厚さ、ヤング率、ポアソン比をそれぞれ  $r_d(\text{m})$ ,  $t(\text{m})$ ,  $E(\text{N/m}^2)$ ,  $\sigma$  とすると、圧力  $P(\text{Pa})$  のときのダイアフラム面の垂直方向の変位  $y(\text{m})$  は

$$y = \frac{3(1 - \sigma^2)r_d^4 P}{16Et^3} \quad (4.2)$$

で表される。このときダイアフラムの面内にかかる最大応力  $\gamma_M(\text{N/m}^2)$  は

$$\gamma_M = \frac{3r_d^2 P}{4t^2} \quad (4.3)$$

である。設計にあたっては最大加圧時にダイアフラム金属の降伏応力  $\gamma_y$  を越えないようにする必要がある。表 1 に種々の材料の弾性的特性を示す。今回は BeCu を用いた。

材料	ヤング率 $E$ ( $10^8\text{N/m}^2$ )	降伏応力 $\gamma_y$ ( $10^8\text{N/m}^2$ )	ポアソン比 $\sigma$	温度 $T(\text{K})$	備考
銅 (99.997%)	1300	3.4	0.355	300	冷間加工 析出硬化 315 °C, 2 時間
ベリリウム銅 (Be:2 at %)	2700	12		4.2	
シリコン銀 (Ag:85 at.%, ) Si:15 at.%)	~670	~4.7		4.2	5 %の歪みを入れた後 350 °C, 5h 熱処理
銀	750	0.54	0.37	300	
真鍮 (Cu:70 at.%, Zn:20 at.%)	1100	4.5	0.33	300	

表 1 ダイアフラム材料の性質

#### 4.1.2 本体の設計・製作

図 4.2 に MCT の構造図を示す。最も重要となるダイアフラムの厚さは、ダイアフラムの直径が  $6.5\phi$ 、最大圧力 4MPa で  $\gamma \leq \gamma_y/3$  の条件では

$$\gamma = \frac{3\gamma_d^2 P}{4t^2} = \frac{3 \times (3.25 \times 10^{-3})^2 \times 4 \times 10^6}{4 \times (t \times 10^{-3})^2} \lesssim 12 \times 10^8 / 3$$

$$t \gtrsim 0.28[\text{mm}]$$

となる。よってこれから厚みを 0.3mm に決定した。極板はキャパシタンスの絶対値が大きくなるように  $10\phi$  とした。今回の MCT は、キャパシタンス変化の基準となるリファレンスコンデンサーと一体型になっている。この構造は、温度によるリファレンスのゆらぎが抑えられるという利点がある。また本体は、ネジ固定式であり、分解修理が可能である。 $^3\text{He}$  が封入される試料室は熱伝導を良くするために銀を用い、核ステージに着脱できるようにボルト型になっている。この銀ボルトには液体 $^3\text{He}$  と内壁とのカピツア抵抗を可能な限り小さくするために、熱交換器として銀微粒子（徳力シルベスト G-1）を充填率約 50% で敷き詰めた。この銀微粒子は予備焼結済みなのでプレスするだけで良い。銀を詰め込む前に、粒子と壁との接触がよくなるように、内壁を軽くやすりで傷をつけた。銀微粒子は、油圧ジャッキを用い、 $15 \sim 25\text{kgf/cm}^2$  程度の圧力でプレスする。本体を治具に固定し、テフロン製のシートを挿入してピストンで押す。充填率が均一になるように銀微粒子を詰めるには、厚さ 0.2mm ずつくらいで数回に分けて行なう。要領としては最初は少なめに銀を計量し低い圧力で下地をつくり、次第に圧力を増していくと良い。そのときの作業の経過を表 2 に示す。

	1 回目	2 回目	3 回目	4 回目
銀の質量 (総量 : g)	0.024	0.085	0.145	0.206
銀の厚み (mm)	~ 0.1	0.3 ~ 0.35	0.55 ~ 0.6	0.8 ~ 0.85
充填率 (%)	~ 59	60 ~ 70	60 ~ 65	60 ~ 64
	5 回目	6 回目	7 回目	8 回目
銀の質量 (総量 : g)	0.263	0.310	0.359	0.378
銀の厚み (mm)	1.05 ~ 1.1	1.3 ~ 1.35	1.6 ~ 1.65	1.6 ~ 1.65
充填率 (%)	59 ~ 62	57 ~ 59	54 ~ 56	57 ~ 58

表 2 銀微粒子詰め込み作業



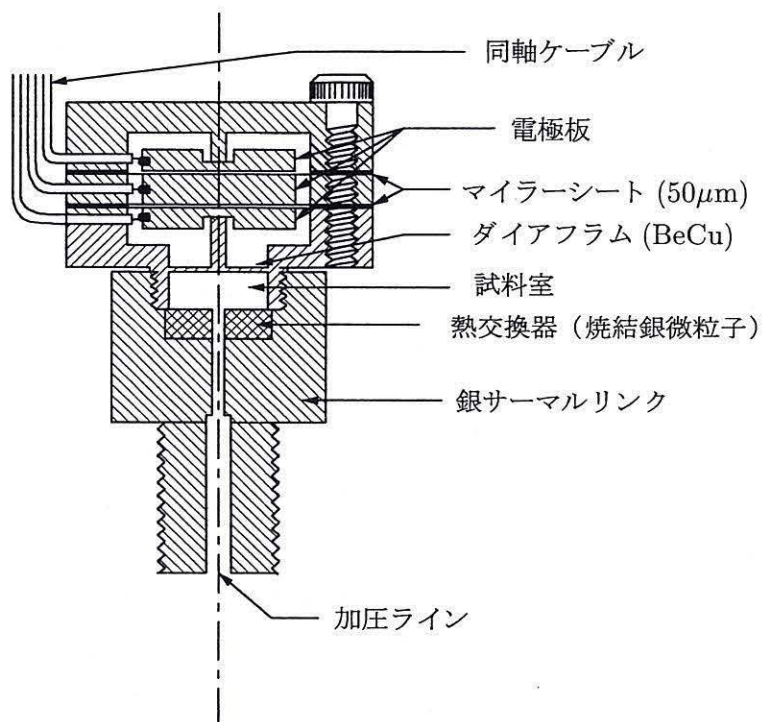


図 4.2 <sup>3</sup>He 融解圧温度計温度計本体

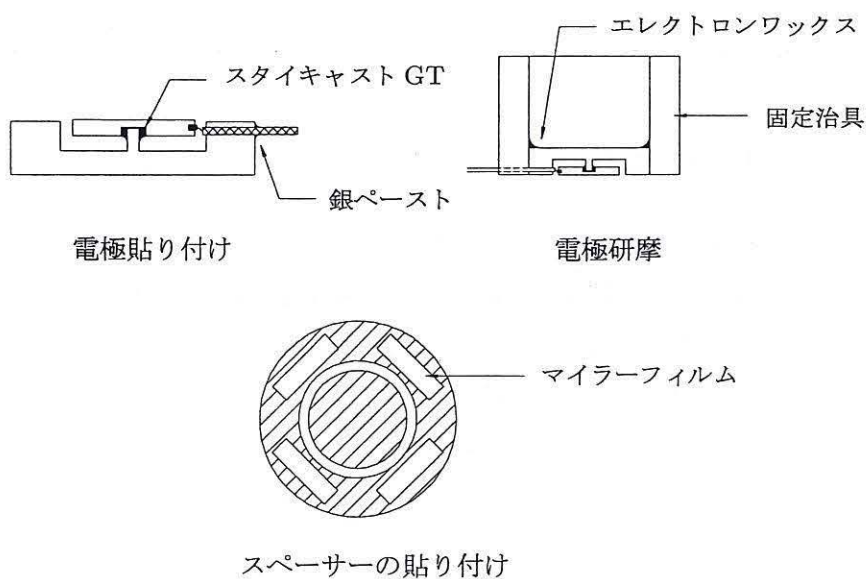


図 4.3 MCT の製作工程

ダイヤフラムは工作後に引張強度を高めるため、315℃で約2時間、真空中で熱処理し、析出硬化を行なった。ダイヤフラム本体は銀ボルトにしっかりとねじ込み、そのすきまをスタイクキャスト 1266 でシールした。

電極は突起部にスタイクキャスト 2850GT で固定する。当初、接着にはスタイクキャスト 1266 を用いていたが、表面に汚れが残っていたためか、スタイクキャストが剥離してしまうことがあった。エタノールで超音波洗浄したよく行なった後、接着強度が増すように軽くやすりがけすることで解決した。接着の際は、電極と本体との絶縁を確実にするために、最初に電極の中心のくぼみにスタイクキャストを塗り、硬化する前にドリルで穴を開けておく。固まったら、再びスタイクキャストを塗り、突起に接着する。中心の電極に関しては、ドーナツ状の板の中心に電極をおいて、スタイクキャスト 1266 を周囲に流し込み、固定した。スタイクキャストが硬化したのち、極細同軸ケーブル（潤工社、最外径 0.6φ）をハンダ付けし、対向する電極同士がきちんと平面になるように、研磨を行なった。同軸ケーブルは芯線を電極にハンダ付けし、外導体を本体に銀ペーストで電氣的にアンカーした。電極間の平面度は、キャパシタンスの圧力変化の線形性に寄与するので、なるべく平面になるようにサンドペーパーの 500 番、800 番、1500 番で研磨し、その後、6μm、1μm 粒径のダイヤモンドペーストで仕上げをした。研磨作業は端が丸くならないように、治具にエレクトロニックワックスで固定して行う。粒径の異なるペーパーに移るときは、超音波洗浄をよく行い、荒い粒子が残らないようにした。電極間のギャップは 50μm のマイラーシートを 4 枚、GE ワニスで貼り付けてつくる。以上のパーツを M2 のネジを 4 本使って、組み立てて完成である（図 4.2, 4.3）。

#### 4.1.3 ガスハンドリングシステム

$^3\text{He}$  の加圧と不純物除去、および圧力調整のためにガスハンドリングシステム（GHS）を製作した。その概略図を図 4.4 に示す。 $^3\text{He}$  ガスは 12l のタンク二本に分けて、配管に漏れがあってもガスが逃げないように負圧で保管しておく。GHS において高圧がかかる部分には  $^3\text{He}$  の占める内容積を小さくするために 1/16 インチステンレス管を用いた。試料は 5N の  $^3\text{He}$  を用い、加圧時に不純物が混入しないように液体窒素トラップを二段設けている。これはステンレス管に吸着物質のモレキュラーシーブを入れて、キャピラリーを二本ろう付けしだけの単純なものである。高圧の生成にはディップスティックと呼ばれる吸着式の高圧発生器を用いる。これは長さ 300mm で肉厚 1.5mm のステンレス管に細かくすり潰した活性炭を入れたものである。窒素トラップやディップスティックの細管口には、粉末がラインに混入しないように、銅のメッシュを入れておく。このディップスティック

を液体  $^4\text{He}$  のストレージタンクに挿入して  $^3\text{He}$  ガスを吸着した後、室温に戻すことによつて  $^3\text{He}$  を脱着させることで高圧を生成できる。 $^3\text{He}$  封入時における圧力較正は、水晶振動子の圧力センサーとデジタル圧力計を用いて行なう。また圧力のアナログ変化が即座に分かるように、100φ の大口径のブルドン管式圧力計を取り付けた。加圧ラインは、MCT 以外のサンプルセルに加圧できるように 2 系統に分かれている。

#### 4.1.4 キャパシタンスブリッジ

$^3\text{He}$  の融解圧力の変化によるキャパシタンス  $C$  の変化は、リファレンスのコンデンサー  $C_{\text{ref}}$  とレシオトランス、ロックインアンプを用いた 3 端子キャパシタンスブリッジによって測定する。キャパシタンスブリッジの回路図を図 4.5 に示す。導線等に含まれる抵抗成分を  $R_1$ ,  $R_2$ , レシオトランスの分圧比を  $r$  とすると、入力電圧  $V_{\text{in}}$  と出力電圧  $V_{\text{out}}$  との比は

$$\begin{aligned} \frac{V_{\text{out}}}{V_{\text{in}}} &= -r + \frac{R_2 + \frac{1}{j\omega C_{\text{ref}}}}{R_1 + R_2 + \frac{1}{j\omega} \left( \frac{1}{C} + \frac{1}{C_{\text{ref}}} \right)} \\ &= -r + \frac{C}{C + C_{\text{ref}}} + j\omega \frac{CC_{\text{ref}}(CR_1 - C_{\text{ref}}R_2)}{(C + C_{\text{ref}})^2} \end{aligned} \quad (4.4)$$

上式より出力信号の実数成分をゼロにする条件は

$$\frac{1}{C} = \frac{1}{C_{\text{ref}}} \left( \frac{1}{r} - 1 \right) \quad (4.5)$$

である。式 (4.4) において虚数成分が存在すると、容量変化による実数成分の変化分が小さくなってしまい、精度良い測定ができない。そこで図 4.5 のバランス抵抗によって、虚数成分を小さくしてから、レシオトランスを調節する。

使用するレシオトランスは 7 桁目まで調整可能である。発振器はロックインアンプの内部発振器を用い、動作周波数は 1kHz, 印加電圧 1V である。実際に MCT を使用するときには、レシオトランスの分圧比を固定しておき、ロックインアンプの最高感度でブリッジのオフバランスの信号をモニターする。ロックインアンプを最高感度付近で使用すると、 $\Delta r/r \sim 10^{-7}$  の分解能があり、これは圧力の分解能に換算して  $\Delta P \sim 1\text{Pa}$  に相当する。

#### 4.1.5 加圧テスト

加圧によるダイアフラムの線形応答と、本体の真空漏れチェックのために、MCT の加圧テストを行なった。テストは液体窒素温度で行なった。本体をバキューム管内に設置

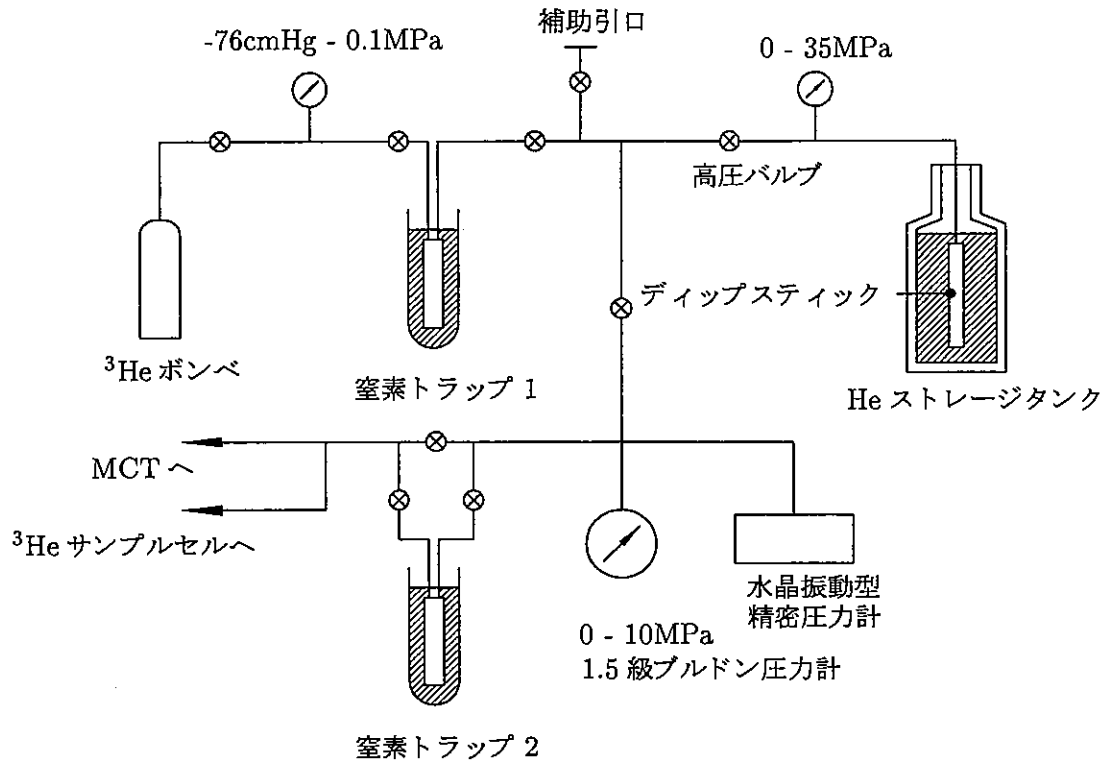


図 4.4 ガスハンドリングシステム

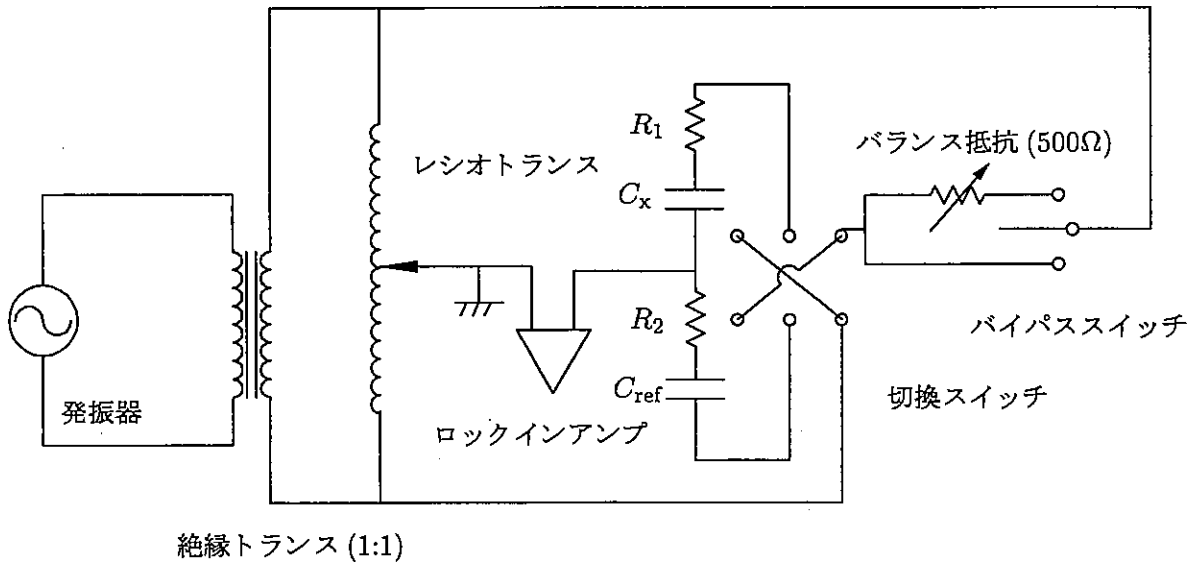


図 4.5 キャパシタンスブリッジ

し、測定リード線は真空配管内を通した。加圧はヘリウムポンプのレギュレーターから GHS に接続し、加圧ラインに 1/16 インチの真鍮製のキャピラリーを SWAGE LOK で接続して行なった。テスト前に 10 気圧ほど加圧した状態で、リークチェックとセル内のフラッシュを行なった。圧力を変化させたとき、レシオトランスの分圧比を調整してブリッジをバランスさせることを一回の測定とし、これを 100kPa ~ 3.5MPa の範囲で行った。圧力はデジタル圧力計で測定した。図 4.6 にテストで得られた圧力  $P$  とレシオトランスの分圧比  $r$  の関係を示す。昇圧と降圧との間で若干、差異が見られた。これは主にクライオスタット自体の温度勾配によるキャピラリー内の圧力の変動、およびリード線の温度ゆらぎが原因と思われる。実際に MCT を核ステージに取付ける際は、キャピラリーをクライオスタットの各部分でアンカーをとり、熱流入を最小限に抑える工夫が必要である。また、リード線を固定し、真空配管に通して、液面のゆらぎの影響をなくすなどの措置を施す。今回のテストにおいては、ダイアフラムの弾性応答をみるだけなので、その点については成功したといえる。

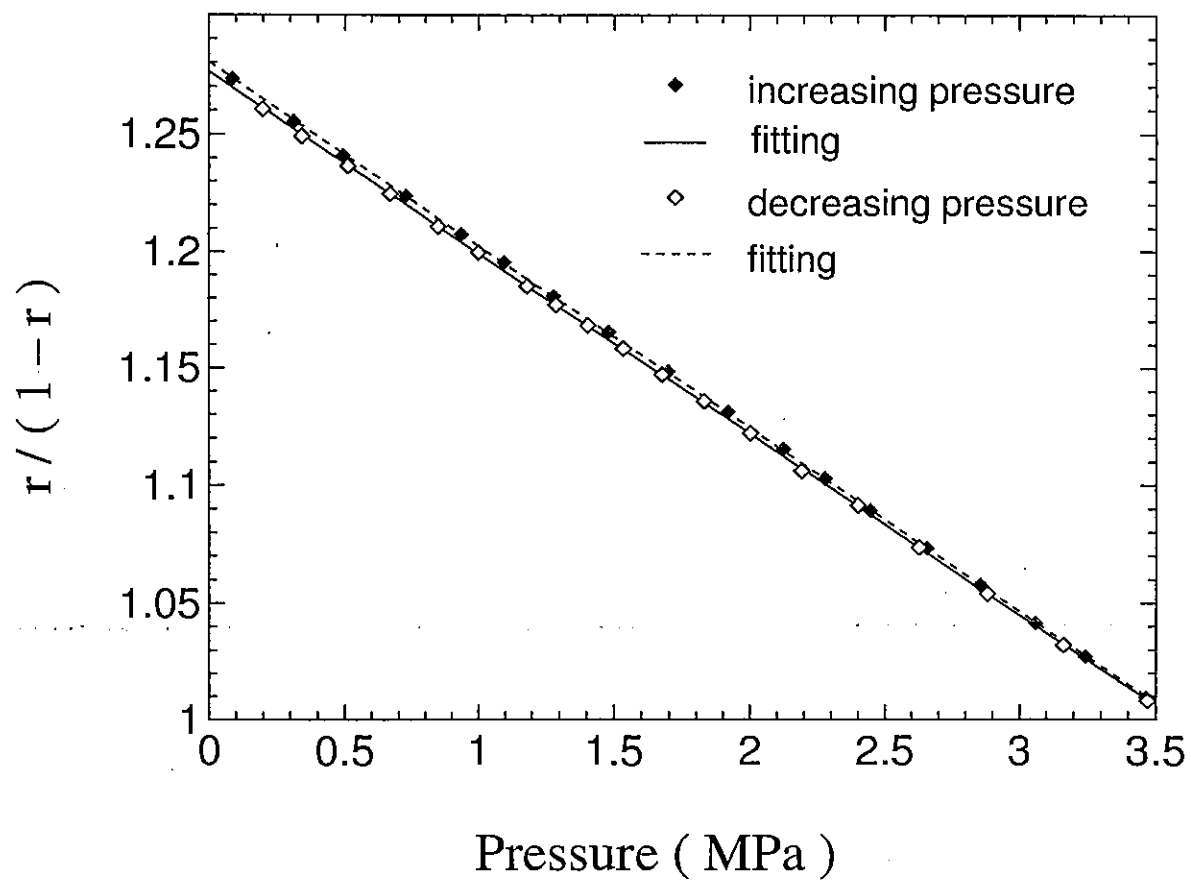


図 4.6 圧力  $P$  とレシオトランスの分圧比  $r$  の関係

## 4.2 Pt-NMR 温度計

NMR 法は 1mK 以下の超低温を測定するのに最も広く用いられている。NMR の対象となる核種としては、磁気モーメントが大きい、コリンガ定数が小さい—すなわち核と電子とが素早く熱平衡に達する、等の条件が要請される。これらの条件では  $^{195}\text{Pt}$  が最も適している。NMR には CW-NMR と Pulse-NMR の二つの手法があるが、Pulse-NMR 法の方が発熱が小さいという理由で超低温の温度測定に向いている。

Pt-NMR 温度計<sup>2, 14)</sup>では Pt のスピン格子緩和時間を測定することにより、コリンガの関係  $T_1 \cdot T_0 = \kappa$  から電子温度  $T_0$  を決定することができる。しかし、コリンガ定数  $\kappa$  は磁気不純物の影響を受け、磁場依存性を持つため誤差が生じやすい。そこで Pt の核磁化  $M$  を測ることによって、温度を求める方法がより一般的である。Pt の核磁化は数 10mK から  $\sim 10\mu\text{K}$  の温度範囲でキュリー則 ( $M \propto 1/T_n$ ) に従うことが知られている。この方法ならば、核のみに関して温度を求めているので、磁気不純物の影響を受けない。

Pt-NMR 温度計のセットアップを図 4.7 に示す。NMR 用の静磁場コイルは超伝導線を使ったソレノイドコイルである。Pt ( $\gamma = 5.6 \times 10^7 \text{s}^{-1}\text{T}^{-1}$ ) の NMR 測定に必要な静磁場の値は、共振周波数が 250kHz のとき

$$\nu = \frac{\omega}{2\pi} = \frac{\gamma}{2\pi} B \quad (4.6)$$

より、 $B \simeq 28\text{mT}$  となる。

コイルがつくる静磁場のサンプル周辺での均一度は、NMR の測定に影響を及ぼす。パルスを打ち込んだ後の核スピンは、静磁場の方向に緩和していくが、その緩和の速さはスピンスピン緩和時間  $\tau_2$  以外に磁場の不均一度に最も大きく依存する。実際に観測される  $\tau_2'$  と真の  $\tau_2$  との差異が磁場の不均一度のみによって決まるとすると

$$\frac{1}{\tau_2'} = \frac{1}{\tau_2} + \frac{\gamma_n}{2\pi} \delta B \quad (4.7)$$

の関係がある。上式より  $\tau_2 = 1.0\text{ms}$  とき、見かけの緩和時間  $\tau_2'$  を 20% 以内に抑えるには、 $\delta B/B \simeq 1.0 \times 10^{-3}$  の均一度がサンプルの長さにあわせて必要であることが分かる。磁場の均一度を良くするには、ノッチコイルを巻くことによって実現できる。しかし、今回のソレノイドコイルには周辺の外磁場の影響を除くために、Nb の超伝導シールドを装着する。ノッチコイルを巻いただけの場合とシールドを取付けた場合とでは、均一度は変化する。超伝導シールド付きソレノイドコイルの磁場分布の精密な計算方法について、付録に示した。

静磁場コイルと超伝導シールドは、希釈冷凍機に熱接触させる。サンプルの Pt 線は、純度 4N、線径  $25\mu\text{m}$  である。これはアニール済みのものを使用する。これを 1000~3000

本束ねて、Pt 板に溶接し、Ag の固定軸にボルト止めする。Pt 線を Ag に直接溶接しないのは、Pt-Ag 合金の形成により、溶接部分の熱抵抗が大きくなるのを避けるためである。Ag の軸は Ag の円形プレートに溶接し、これを 6 本のネジで核ステージに固定する。Pt-NMR 温度計は、核ステージの最低温度を測るものなので、設計上、Pt 線と核ステージとの熱接触を良くすることを重点に置いている。

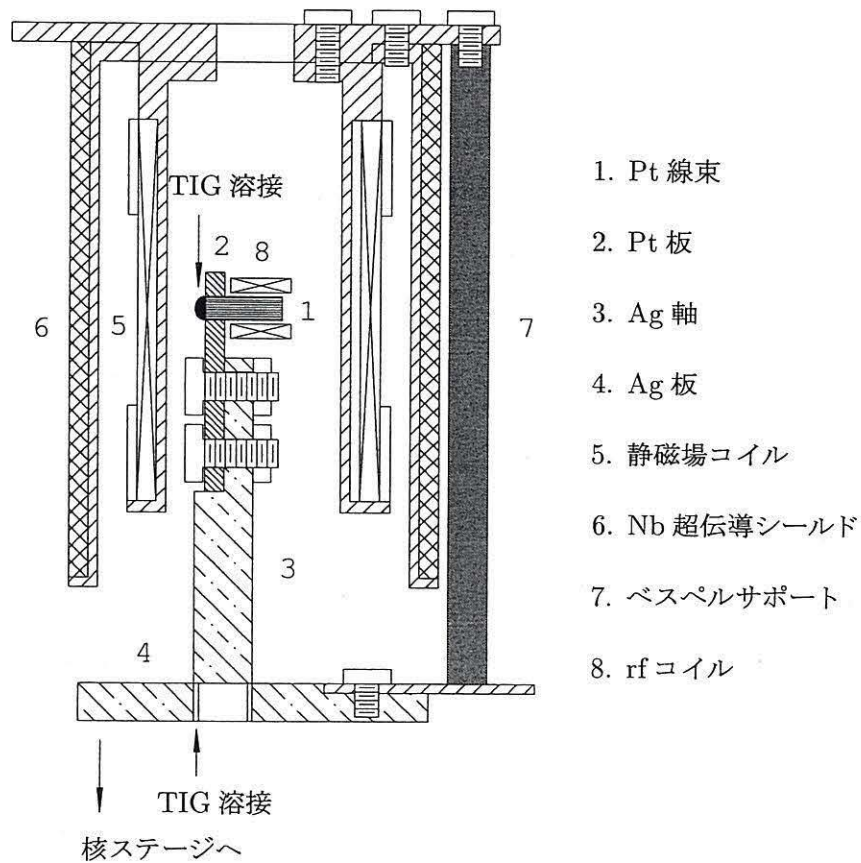


図 4.7 Pt-NMR 温度計概略図



## 5 まとめ

今回、高い冷凍能力をもつ大型核断熱消磁装置の各要素について、設計・製作および試験を行った。設計の基礎となるのは、冷却力の高い希釈冷凍機 (120mW at 120mK) と、強磁場 (9T) を発生させる超伝導マグネットである。これらに合わせて、核ステージとヒートスイッチを設計した。核ステージは、低温を長時間保持できるよう、高磁場中での有効量を稼ぐために形状を工夫し (9T 中 93mol)、また熱伝導を良くする目的でアニールを行なった。この巨大な核ステージでは、1mK 以下の超低温を一ヶ月以上保持することが可能である。ヒートスイッチは、冷凍機の設計において最も重要な熱伝導と熱絶縁の二つの役割を担う。2.2.1 節の計算に示したように、サーマルリンク全体での熱伝導を良くするには、ヒートスイッチ本体のみでなく、半田付けや、ネジ止めの箇所熱抵抗を十分小さくする努力が必要である。核の冷却力を効率良く使うためには、材料自身の熱伝導を良くすること、熱の流路に無駄な熱抵抗をつくらないこと、そして外部からのヒートリークを極力抑えることが重要である。今回は、設計した核ステージを使って実際に断熱消磁を行う段階にまでは達しなかったが、今後も上記の点に留意しつつ、設計と製作を進めていく予定である。

また、超低温用の温度計として MCT と Pt-NMR 温度計の設計・製作を行なった。MCT は GHS も含めて完成しており、冷凍機に搭載する準備は整っている。Pt-NMR 温度計は基本設計は終わっており、現在鋭意製作中である。

## 付録：超伝導シールド付き高均一度ソレノイドコイルの磁場分布計算

超低温の物性実験において、超伝導コイルは、核ステージの励磁用大型マグネットや、ヒートスイッチ、Pt-NMR 温度計、NMR 実験、帯磁率測定セルなど、頻繁に用いられる。これらのソレノイドコイルは外磁場を遮蔽するため、またソレノイド自身のつくる磁場が、磁気に敏感な他の装置に影響を及ぼさないように、同心円の超伝導シールド管に収められる。超伝導シールドの表面には磁束の侵入を妨げる方向に、マイスナー電流が流れる。この電流がつくる磁場によって、シールド管を装着すると、ソレノイドのコイル定数は小さくなり、その磁場分布の計算は複雑になる。

特に NMR 用静磁場コイルには、サンプル近辺において高い空間的均一度が要求される。高い均一度を実現するためには、通常ノッチコイルを巻足すことによって可能である。しかし、超伝導シールドを装着すると、ノッチコイルのみでベストな設計とは異なってくる。そこでシールド付きのソレノイドコイルの磁場分布を計算するための処方箋<sup>15)</sup>が必要となる。以下にその計算方法および、コンピュータプログラムによるシミュレーション計算結果を示す。

### [計算方法]

有限長のソレノイドコイルの中心軸上での磁場は、半径  $a$  に対してコイル長  $l$  が長いとき、

$$B_z(0, z) = \frac{\mu_0 n I}{2} \left( \frac{x}{(x^2 + a^2)^{1/2}} \right)_{x=z-l/2}^{x=z+l/2} \quad (6.1)$$

で近似計算できる。シールドの効果を計算に取り入れるには、まず、シールド表面上の電流分布を計算する。シールドを  $N$  個の短い円筒に切り分け、その中心座標で磁場の動径成分がゼロであるという境界条件を課す。よって次の  $N$  個の方程式

$$B_\rho(R, z_j) = B_\rho^{\text{coil}}(R, z_j) + \sum_{i=1}^N M_{ji} I_i = 0 \quad (6.2)$$

$$(j = 1, N) \quad (6.3)$$

が成り立つ。ここで  $B_\rho^{\text{coil}}$  はコイルがシールド表面につくる磁場の動径成分、 $M_{ji}$  は切り分けたシールドにおいて  $z_i$  にあるセクションが、 $z_j$  の地点につくる磁場の動径成分である。それぞれのセクション内では、電流は均一に分布しているとする。このモデルを図式化すると図 6.1 のようになる。

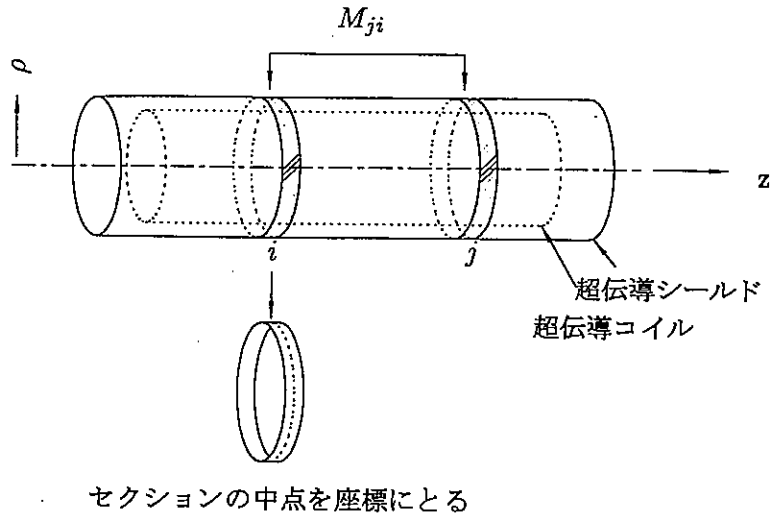


図 6.1 シールドを分割して計算

$B_\rho^{\text{coil}}$ ,  $M_{ji}$  はそれぞれ

$$B_\rho^{\text{coil}}(R, z) \quad (6.4)$$

$$= \frac{\mu_0 n I}{2} \left( \frac{a}{R} \right)^{1/2} \left( \frac{(2-k^2)K(k) - 2E(k)}{k} \right)_{x=z-l/2}^{x=z+l/2} \quad (6.5)$$

$$M_{ji} = \frac{\mu_0 N}{2L} \left( \frac{(2-k^2)K(k) - 2E(k)}{k} \right)_{x=z_j-z_i-L/2N}^{x=z_j-z_i+L/2N} \quad (6.6)$$

で与えられる。ここで、 $R$ ,  $L$  はシールドの半径と長さであり、 $K(k)$ ,  $E(k)$  はそれぞれ第一種完全楕円積分と第二種完全楕円積分を表す。

$$K(k) = \int_0^{\pi/2} \frac{d\theta}{\sqrt{1-k^2 \sin^2 \theta}} d\theta \quad (6.7)$$

$$E(k) = \int_0^{\pi/2} \sqrt{1-k^2 \sin^2 \theta} d\theta \quad (6.8)$$

$$k^2 = 4aR / [(a+R)^2 + x^2] \quad (6.9)$$

ただし、 $M_{ji}$  の  $k$  は、 $k^2 = 4R^2 / [4R^2 + x^2]$  を用いる。 $N$  個の方程式、(6.3) は対称性を考慮するともう少し簡易になる。行列  $M_{ji}$  の対角要素は  $M_{ii} = 0$  で、非対角要素は  $M_{ij} = -M_{ji}$  の関係があり、 $i-j$  のみに依存する。電流分布は、シールドの中心で対称であり、 $N$  が偶数のとき係数をまとめることができる。式 (6.3) は

$$-B_\rho^{\text{coil}}(R, z_j) = \sum_{i=1}^{N/2} M'_{ji} I_i \quad (j = 1, N/2) \quad (6.10)$$

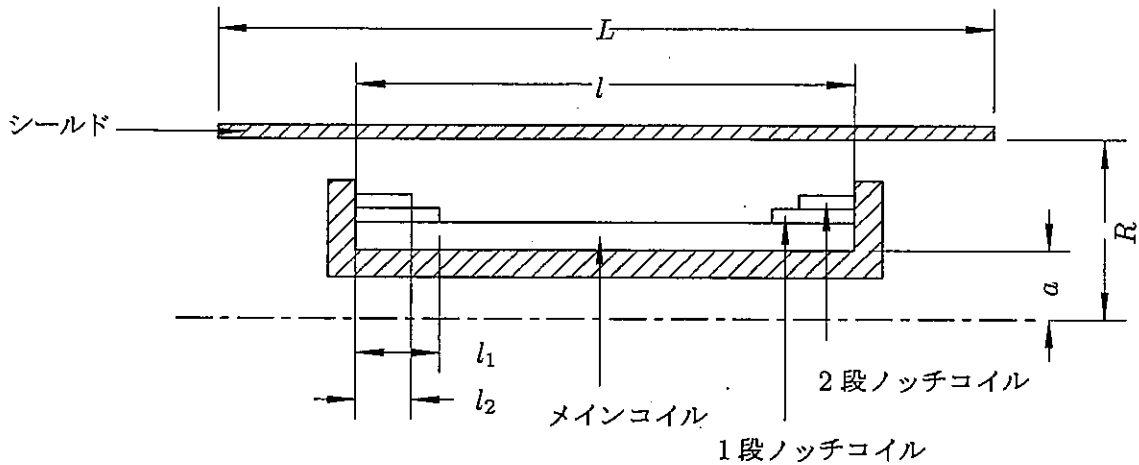


図 6.2 座標の取り方

と書き直すことができ、計算量が四分の一で済む。ここで  $M'_{ji}$  は

$$M'_{ji} = M_{ji} + M_{j,(N-i+1)} \quad (j = 1, N/2) \quad (6.11)$$

計算手順としては、(6.10) のマトリックスを求め、電流密度  $I_i$  を求める。次にこの電流分布がソレノイドの中心軸に作る磁場を式 (6.1) を用いて計算し、ソレノイド自身の磁場分布に加え合わせて真の磁場分布が求められる。

#### [計算結果]

実際の計算において、とりうるパラメータはコイルの半径  $r$ 、長さ  $l$ 、シールドの半径  $R$ 、長さ  $L$ 、ノッチコイルの長さ  $l_1, l_2, \dots$  である。それぞれの座標は図 6.2 ようにとる。ノッチコイルはメインコイルの端に巻き、コイルとシールドの中心は一致している。シールドの分割数は多ければ多いほど、磁場の絶対値は精度良く求まる。計算に用いたコイルとシールドの形状を表 1 に示す。今回は、計算する間隔を 0.5mm 間隔にするため  $N = 112$  とした。図 6.3 にノッチコイルの長さを変えて計算した結果を示す。この結果からノッチコイルのみでベストな状態のマグネットにシールドを被せると、均一度は悪くなることが分かる。ノッチコイルを小さくすることで、均一性を元の状態に近づけることができる。

コイルのつくる磁場が、超伝導シールドの臨界磁場を超えてしまう場合（例：Nb では  $H_c = 2000 \text{ Gauss}$ ）は、シールドの代わりにシールド表面の電流分布を再現するような超伝導コイルを置く。これはアクティブシールドと呼ばれる。アクティブシールドの設計方法については、文献<sup>16)</sup>を参照されたい。

形状	
コイル	長さ 40mm 半径 10mm 4層
シールド	長さ 56mm 半径 17mm
巻密度	7500 ターン/m

表1 コイル・シールドの形状

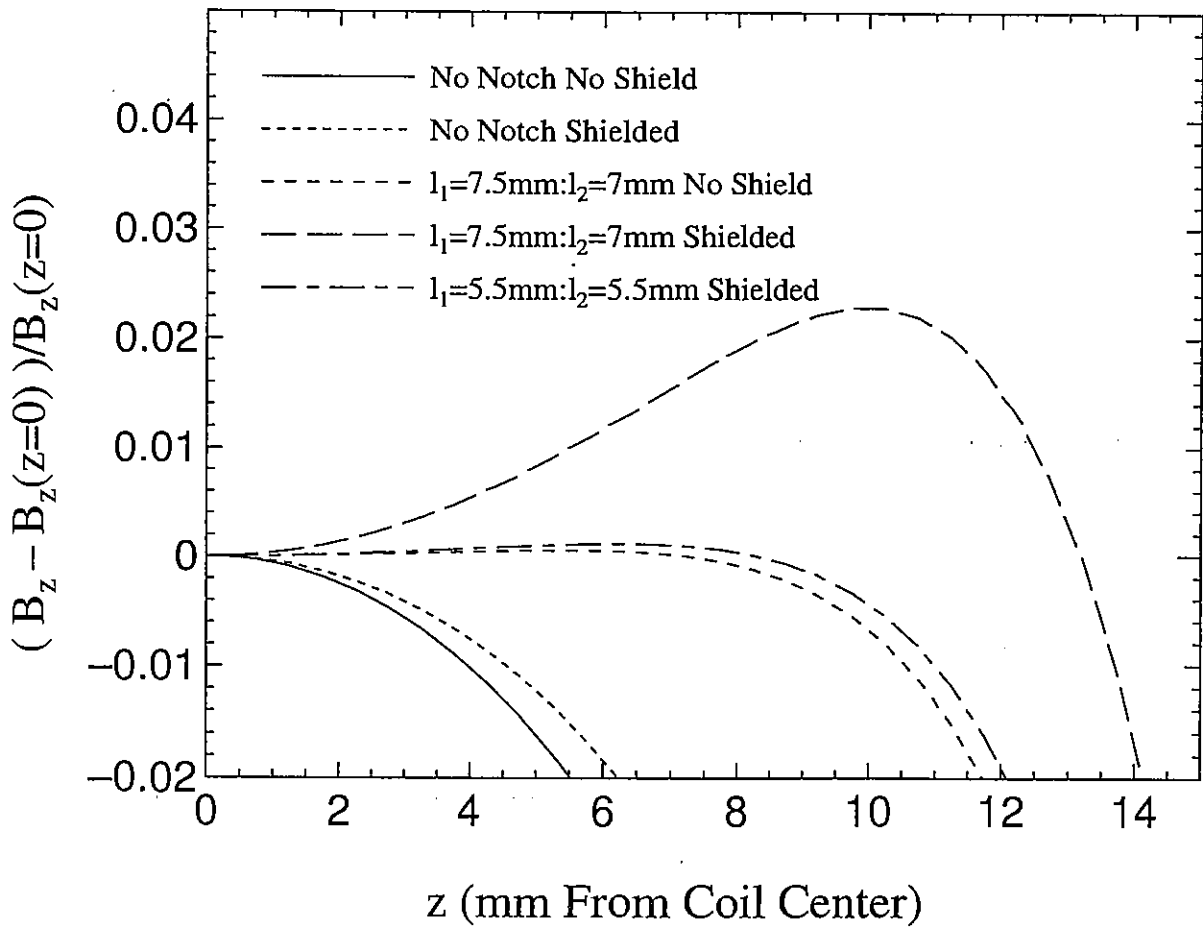


図 6.3 ソレノイドコイルの均一度

## 参考文献

- 1) P.Hakonen, R.T.Vuorinen, and J.J.E.Martikainen:*Phys.Rev.Lett.*, **70** (1993) 2818
- 2) K.Gloos, P.Smeibidle, C.Kennedy, A.Singsaas, P.Sekowski, R.M.Mueller and F.Pobell:*J.Low Temp. Phys.*, **73** (1988) 101
- 3) 田沼静一, 馬宮孝好: 超低温 1.4 実験物理科学シリーズ 1 共立出版
- 4) P.Kittel:*Advances in Cryogenic Engineering*, **35** (1990) 1141
- 5) Erwin Schubert:*Rev.Sci.Instrum.*, **55** (1984) 1486
- 6) R.M.Mueller, C.Buchal, T.Oversluizen, and F.Pobell:*Rev.Sci.Instrum.*, **49** (1978) 515
- 7) T.Mamiya, H.Yano, T.Uchiyama, S.Inoue, and Miura:*Rev.Sci.Instrum.*, **59** (1988) 1428
- 8) T.Okamoto, H.Fukuyama, H.Ishimoto, and S.Ogawa:*Rev.Sci.Instrum.*, **61** (1990) 1332
- 9) A.Sawada et al.:*Cryogenics*, **34** (1994) 953
- 10) T.Uchiyama and T.Mamiya:*Rev.Sci.Instrum.*, **58**, (1987) 2192
- 11) R.C.M. Dow, A.M.Guénault, and G.R.Pickett:*J.Low.Temp. Phys.*, **47**, (1982) 477
- 12) S.Y.Shen, J.B.Ketterson, and W.P.Halperin:*J.Low.Temp. Phys.*, **31**, (1978) 193
- 13) 福山寛: 固体物理, **30** (1995) 938
- 14) W.Yao, T.A.Knuuttila, K.K.Nummila, J.E.Martikainen, A.S.Oja, and O.V.Lounasmaa:*J.Low Temp. Phys.* **120** (2000) 121
- 15) K.A.Muething, D.O.Edwards, J.D.Feber, W.J.Gully, and H.N.Scholz:*Rev.Sci.Instrum.* **53** (1982) 485
- 16) U.E.Israelsson and C.M.Gould:*Rev.Sci.Instrum.* **55** (1984) 1143