カスケード式回転磁気冷凍機

青 木 亮 三

九州大学理学部 福岡市東区箱崎

(1985年8月20日受理)

Magnetic refrigerator operating from roomtemperature
with permanent magnet

Ryozo AOKI

Kyushu Univ. Dept. of Phys. 33

Hakozaki, Fukuoka 812

(Received August 20, 1985)

Synopsis :

Design conditions of the specific refrigerator is discussed, and a proto-type apparatus for the experiment was constructed. Gd disc of 20mm dia. $\times$ 10 or 20mm thickness was used and magnetized by step-promoting magnet with Sm-Co compound pole-pieces of $(30\text{mm})^2 \times 10\text{mm } t$. It provides magnetic field of 4 to 6 kOe, and gives rise to $T \leq 1.2\text{K}$ adiabatically on the Gd specimen. In order to obtain considerable low temperatures, 4 or 6 Gd specimens were thermally connected via thermal switch in cascade series. The switch was operated by mechanical contact between high-conducting metal plates. At present, the stationary temperature difference through the cascade series was attained only to 0.46K, probably as due to poor conductance ($K_{ON} \leq 0.2\text{W/K}$) of the thermal switch.

I. はじめに

磁気冷凍の原理を使って、室温より作動するコンパクトな冷凍システム、したがって巨大な水冷電磁石や極低温を必要とする超電導磁石を使うことのない冷凍システムを考案し、初期段階の装置を作ってその概念を実証した。磁界を作るのに小型・強力な永久磁石を使い、単一磁性体をカスケードに接続してそれぞれの磁性体で得られる温度差を重ねて全体として大きな温度差を得るようにした。これを実現するために永久磁石を回転させる方式を取り、磁性体で得られた寒冷が、カスケードの低温側だけを常に冷却するような機械的接触による熱スイッチを考案した。これまでの実験結果によればカスケード両端で得られた温度差は0.46Kであったが、各種熱損失の原因の検討によってこの装置の実用性は立証できた。この報告では、このユニークな装置構成に当たっての設計方針、装置の構造と作動原理、この装置を使つての実験結果とそれについての考察を述べる。

II. 設計方針

1. 室温より作動すること

これから開発される磁気冷凍機に対してそれと比較される既存技術のガス圧縮型冷凍機は高圧、振動、騒音などの問題はあっても、その特徴は加圧膨張により温度変化を生ずる作業物質自体が流体のため弁操作により循環制御され熱移動媒体としても利用できる点にある。

そのため室温から低温までの冷却系統としてはその高温部領域はむしろガス冷凍機に委ねる分業結合が効果的であるかもしれない。しかし一方、冷凍機は御存知のように熱交換器による feed-back loop を包含した非線型回路であり、このような別種冷却機の複合システムには複雑な制御の問題が生ずると予想され、むしろ単一の磁気冷却系統により、スイッチ ON 一つで室温から冷却を開始して他の寒剤や補助冷却機を要せず所要低温に到達する磁気冷凍機の設計を対象としてみよう。その場合にはかつて開発が試みられた電子

冷凍器と同様に、小型で低振動低騒音の磁気冷凍の利点が完全に生かされると考えられる。

2. 小型永久磁石の採用

磁気冷凍機は圧力の代りに磁界を用いるものであるが、電子の磁気エネルギー $\mu = g\mu_B S$ の磁界 H のもとでの磁化エネルギー $\mu H = k_B T$ は、 $H = 10\text{kOe}$ でもわずかに $T = 1.3\text{K}$ にしかならない。そのため強磁性臨界点付近の協力現象を利用して外磁界 H の効果を大きくすることが Brown らにより提唱され¹⁾、初めて室温付近での磁気冷凍も現実的となったがそれでも $H = 10\text{kOe}$ ではせいぜい数 K までである。そのため一回の磁気冷却で十分な温度低下 ΔT を得ようとすれば強大な磁界を必要とする。通常の電磁石では $H \leq 20\text{kOe}$ であるが Brown は $H = 70\text{kOe}$ の水冷電磁石を用いてしかも 50 回以上の繰り返しにより $\Delta T = 47\text{K}$ を得た¹⁾。さらにその後 $\Delta T = 80\text{K}$ まで報告している²⁾。

しかしながら室温附近からの冷凍機に巨大な水冷電磁石、あるいは液体ヘリウムによる極低温を別に要する超電導磁石の使用は有効な装置構成とは考えられず、ここでは超電導によらない小型（永久）磁石を用いることにする。

3. カスケード方式

小型磁石を用いて十分な低温を得るためには二つの方法が考えられる。一つは単一の磁性体に磁化消磁の過程を反復して次第に低温を得る方法(one-shot方式)である。構造は簡単であるが定常動作は得られないので今まで主として実験室で最低温度到達法として試みられてきた。しかし外部からの熱流入に抗して低温を保持しあるいは一定の冷却能力が要求される一般の冷凍機には次の方法が適当である。それは多数の磁性体を縦列接続して、個々の磁性体による小さな温度差を積み上げてこの縦列鎖の両端に大きな温度差を生成させる方法（カスケード方式）である。この鎖の上を磁石を移動させることにより各磁性体に位相をずらせて磁化消磁の過程を行わせ、生成する熱を鎖の一方（低温側）から他方へ運ぶ。そのためには各磁性体間に一方向にだけ熱が移動するための弁の役を果たす熱スイッチが挿入される。

4. 回転磁石方式

磁気冷凍機の作動には必ず磁化と消磁の過程が含まれるので磁石の励磁と減磁を断続的に行うかまたは磁極間から磁性体を出入させねばならない。電磁誘導 L の大きい大型電磁石では励磁電流の増減に時間を要するのでサイクルの反復周期が制限されることから磁極

と磁性体の相対運動が採用され、しかも大型磁石の場合、移動が困難なので通常、磁性体移動が採られる。ところがそうなると磁性体縦列鎖は空間固定できなくなるので両端部での外部との熱接触が問題となる。そのため Steyart³⁾ や Brown¹⁾ のように固体冷凍機でありながら気体や液体の熱交換媒体を用いざるを得なくなり、その特色が失われ冷熱流体混合などの技術的問題が生ずる。その点からここでは Fig. 1 のように磁性体を固定して外部の熱交換器との間に充分な固体面接触を可能にし、代わりに磁石を動かす方式を選んだ。

容易に移動可能な小型軽量の磁石としては最近、開発進歩の著しい希土類永久磁石を採用する。この場合には励磁電流も不要できわめて省エネルギーであり構造も簡単である。磁石の移動方式には往復運動も考えられるがモータ駆動などを円滑にするために磁性体を円周上に配列することにより回転方式を選ぶ。

問題は永久磁石の場合に磁極間に得られる磁界の強さであるが、H-30（日立金属 株式会社）、R-30（信越化

Fig. 1 A schematic picture of the cascade refrigerator with rotational magnet. a) magnetic substance for cooling b) thermal switch b') thermal link c) adiabatic support d) rotational magnet yoke e) step-motor promoting the magnet f) cold reservoir g) heat exchanger at room temperature h) adiabatic vacuum vessel.

学 К. К.) などの Sm-Co 系磁石では残留磁束密度 $Br = 10.5 \sim 11.5 \text{ kG}$, また最近の Nd-Fe 系磁石 (住友特殊金属 К. К. NEOMAX-35) では $Br = 11.8 \sim 12.5 \text{ kG}$ のものが発売されている。さらに Fe-Cr-Co 系では最高 $Br = 15.6 \text{ kG}$ が本間, 金子氏らによって報告されている⁹⁾。ただし, この Br は磁極間隙を密着させていたときの理想磁界値に相当するもので, 一般に永久磁石対の間隙空間では Fig. 2 のように間隙距離 L_g とともに磁界は低下する。

実験に用いられた H-30 の $(30 \text{ mm})^2 \times 10 \text{ mm}$ の板状磁石 ($Br = 10.5 \text{ kG}$) を鉄製 yoke にとり付けた $L_g = 23 \text{ mm}$ の場合には, 磁界分布を測定すると磁極表面中央で $H_0 = 3.4 \pm 0.1 \text{ kOe}$, さらに空隙中心点では $H = 2.8 \sim 2.9 \text{ kOe}$ と小さくなる。大きな排出熱容量の磁性体を用いるためにこの L_g をさらに広げる場合にはこれではとても実用的な磁界を得ることは予想できなかった。ところがこの磁極間隙に 20 mm 径 $\times 20 \text{ mm}$ 厚の磁性体 Gd ($T = 305 \text{ K}$) を挿入したところ H_0 は $4.5 \pm 0.1 \text{ kOe}$ に上昇した。しかも半径方向にも分布はかなり均一化されており, これは結局, 挿入された磁性体の表面磁荷誘起の効果だけでなく, いままで磁極間で外方に漏洩していた磁束が磁性体挿入により磁極間に吸引されるためと考えられる。この効果によって,

Fig. 2 Magnetic field-strength distribution in the pole-piece gap space.

たとえ大きい磁性体を用いるためにそれが密接する程度にまで磁極間隙を拡げても比較的強い磁場を印加することが可能であることが判った。例えば $H = 4 \text{ kOe}$ とすると Rosenblum らによる¹⁰⁾ Gd についての $S(H) - T$ 曲線からのデータ $\Delta S(H = 4 \text{ kOe}) = 0.032 \text{ R}$ (at $T = 293 \text{ K}$) を用いると $\Delta T = T \Delta S / C = 1.6 \text{ K}$ が磁気熱量効果として期待される。

5. 機械的接触による熱スイッチ

磁気冷凍機設計の大きな問題点は熱スイッチにある。磁性体の磁化, 消磁により発生または吸収される熱をカスケード鎖の一方に選択的に輸送するためには, 流体弁に相当する固体間の何らかの熱流制御機構を必要とするが, 磁性体自身まず良熱伝導性でなければならない。そのためには金属合金系が好都合である (化合物磁性体は硬くて脆くて, GGG などの単結晶を除いては一般に熱伝導が小さい)。次にその表面に Ag, Au, Cu などの高伝導金属板を接着して熱スイッチ部へ効率良く熱を導く。そこでは磁石のステップ移動に連動させて熱流を効果的に ON, OFF する機構を必要とする。できれば移動してくる磁界を利用して Be, Ga などの半金属や半導体内の熱流磁界効果などにより非接触的に熱流を ON-OFF することが理想的である。事実, Be の高純度単結晶を用いて $T \leq 20 \text{ K}$ では $H = 6 \text{ kOe}$ で $K_{\text{ON}} / K_{\text{OFF}} > 10^2$ の高熱伝導比特性が報告されている¹¹⁾。しかしこれら物質内の熱流制御機構 $K(H)$ は原理的に carrier の流れの磁気偏向に依っている。そのため $\partial K / \partial H$ は Hall 係数と同様に carrier 数が少い程顕著となっている。そのため大きい $K_{\text{ON}}(0) / K_{\text{OFF}}(H)$ のものは $K_{\text{ON}}(0)$ 自体決って大きくはとれない。また少し高温になると carrier が運ぶ熱流をフォノンが運ぶ熱流が凌駕するために K は H に敏感ではなくなる。そのためこのような熱流磁気効果スイッチは一般に $T \geq 100 \text{ K}$ では使えなくなり, 室温からの冷凍機には別の機構の熱スイッチを必要とする。ここでは代わりに金属板間の機械的圧迫接触による熱スイッチを試みる。すなわち両側の磁性体からの数枚の金属板を交互に対面するように真空中に配置し, ON のときには上部から圧迫することにより面間が接触して熱が移動し, 外部からの圧力を除くと金属板は弾性復元して各面間は分離して OFF の状態となる。

試みに 2 枚の銀板を重ねて加圧して熱の移動を測定したところ, $dQ/dt = -K \cdot S \cdot \Delta T$ で表わされる接触熱伝導度 $K (\text{W/K} \cdot \text{cm}^2)$ は Ag 板接触では 620 g/cm^2 の圧接で $K = 0.13 \pm 0.02$ が得られ, この接触面を In ハ

ンダメッキすると $K \sim 0.21$ に上昇した。さらに面接触を完全にするために In 面に Ga を塗覆すると $K \sim 0.50$ に達した。しかしこの場合は圧力を除いても板間は分離せず熱流 OFF とはならなかった。また Ag 板間の場合、圧接力を 30% 軽減すると K は 10% 低下した。この $K = 0.13 \text{ W/K} \cdot \text{cm}^2$ をもつ熱スイッチの接触面積を $S = 6 \text{ cm}^2$ とし、25 g の Gd と、Ag スイッチ板 ($V = 0.6 \text{ cm}^3$) を合せた熱容量 C の見積りから $\tau_{\text{ON}} = C/K \cdot S$ により熱緩和時間を計算すると $\tau_{\text{ON}} \sim 12 \text{ sec}$ が得られた。もっとも Ag 板内の熱抵抗その他を考慮すれば τ は数 10 sec となるがそれでもこの熱スイッチにより現実的な磁気冷凍機的设计が可能と考えられた。

6. 作業物質としての磁性体

カスケード方式の磁性体多段接続により高低温端間に大きな温度差を保持する状態では各磁性体の作動温度は階段的に異なる。一般に強磁性体では磁気臨界点 T_c の近傍で大きなエントロピー変化 ΔS が小さな外磁界 H によっても生じ、その結果温度変化 $\Delta T = T \Delta S / C$ が発生する。この ΔT は T_c の両側でかなり急激に低下することが Fig. 3 の Gd についての測定結果 (●印) でも示されている。とくに低温側の比較的急な低下は $T < T_c$ の自発磁化 M による円柱状磁性体における内部磁場の減磁効果もある程度効いているためとみられる。この $\Delta T (|T - T_c|)$ 特性により、室温から低温に至るカスケードシリーズ設計のためには作動温度分布に合せて T_c が選べる磁性材料を必要とする。それには Fig. 4 に報告されている⁹⁾ ような希土類合金が好適と考えられる。Gd-Dy, Gd-Ho, Dy-Ho 系合金では組成によって磁気秩序温度 T_0 が連続的に変化する*。

一般に希土類元素間の合金では磁化 M は大約両成分の平均となり、 T_0 は同一結晶系内の置換型合金の場合はほぼ組成によって連続的に変化する。しかし T_0 には交換相互作用係数 J が大きく効くので合金格子内の原子間距離が大きく変化するときには Gd-Lu 系のように途中からずれるものがある。ここで問題は、Gd 以外の元素の場合は軌道角運動量 L が存在して結晶場を感じて磁化容易軸異方性を生ずるので、多結晶の場合は磁区構造が現われる。そのため $T < T_0$ の自発磁化領域では外場 H をかなり大きくしないと磁化飽和による大きなエントロピー S の減少は得られないと考えられる。しかしこの問題も T_0 に近い臨界点近傍

($T \leq T_0$, $T_0 \leq T$) 領域では磁気異方性が消失して問題はなくなる⁹⁾。また $L \neq 0$ の元素でも結晶場分裂エネルギーよりも大きい $k_B T$ の高温領域では low-spin state による ΔS 低下の状態は解消するので例えば Gd^{3+} ($J = 7/2$) よりも J の大きい Dy^{3+} ($J = 15/2$) の $T > 20 \text{ K}$ 領域での活用なども Barclay らによって提案されている¹⁰⁾。

ここではとりあえず室温付近での実験のために、Gd 金属試料を採用する。Gd 素材は数社のものが純度

Fig. 3 Adiabatic temperature changes ΔT of Gd samples by $H = 6 \text{ kOe}$ field elimination at initial temperature T . a) as arc-melted of grains (99.9%) supplied from a product Ltd. b) as arc-melted of chips (99.9%) supplied from another Ltd. b') after annealed of b) by $800^\circ\text{C} \times 6 \text{ h}$ in vacuum.

Fig. 4 Magnetic ordering temperature T_0 of some heavy rare earth alloys, cited from Bozorth's work⁹⁾.

* もっとも強磁性以外の磁気転移の場合には磁気熱量効果による温度変化 ΔT は T_0 近傍でかなり複雑になる⁹⁾。

3-nineと公称して市販されているが、これをアーク溶解後プレス整形して、断熱条件で磁化による温度上昇 ΔT を測定したところ、Fig. 3 のようにシャープな温度依存性でピーク点で $\Delta T = 0.75\text{K}$ を示すものがあったが、それに比べてわずかに27%程度にしか ΔT が得られないものもあった。小型磁石による $H < 10\text{kOe}$ の弱磁場では磁化飽和に遠く、内部の結晶欠陥による磁壁捕捉などが効く可能性があるのをこれを真空炉で $800^\circ\text{C} \times 6\text{h}$ の焼鈍を試みたところある程度回復したがなお ΔT_{max} は80% ほどであり、またピーク点 T_0 も低下している。一般に希土類金属試料の表示純度は全希土類元素中の表示元素の割合であって、他の通常金属含有やガス成分は表示外である。Gd の場合はふつう酸素0が0.3~0.4w%，多いものでは1w%を超えて含有されているものがありこれは真空加熱などの方法では脱離しないとされており、また Ca, Al, Si, Ta, Fe など0.数~1%以上混入の可能性があるとのことである¹¹⁾。 ΔT は磁気冷凍機の作動特性に直接関係するので磁性体の特性吟味はとくに弱磁場磁化の場合には重要な問題となる。

III. 組立て構造と作動原理

1) Fig. 1 のように真空槽の中に設置された断熱板の円周上に磁性体 M_i をその両側に熱スイッチ $S_{i,i+1}$ を介して連結して固定する。その一端は高温部として外部の熱交換器または熱浴槽に、また他端は低温部として被冷却体に接続される。この円周上の磁性体をはさむようにして永久磁石対が鉄製 yoke に2ないし3対付設されて中心軸のまわりに回転できる。回転には中心軸を外部からステップモータでプログラム駆動する計画であるが現在の実験装置ではギア機構を経て手で移動させている。また Fig. 1 には多段固定板の縦列接続を行っているが、当面一枚の固定板に4コ（または6コ）の磁性体を設置した装置例を Fig. 5 に示す。

熱スイッチの作動のための圧接には銀板に小鉄片をとり付けて付属の移動磁石による吸引を利用したが、構造複雑のため、のちには磁石と連続するレバーによる機械的圧接法を用いた。

このような縦列鎖の上を磁石が step 移動するときの熱スイッチの作動および各磁性体の温度変化の様子が Fig. 6 に示されている。この場合、熱は右側の低温部から左側の高温部の方へ移動する。この移動の方向を決めるのは各磁性体の磁化および消磁時に隣接す

る左右どちらのスイッチを ON, OFF するかを選択によるのであって、磁石の移動方向に依るのではない。Fig. 6 では磁石は左から右へ移動しているがその場合には図示されているように磁石が右へ移動した跡の磁性体、 M_{i-1} に消磁による低温が生じて、それに右側の磁化中の M_i から ON の $S_{i-1,i}$ を通じて熱が流入してゆく。理想的には完全に熱が移動すると両者はもとの一様温度状態に戻った後に磁石の移動によって M_i のところに新たに低温部が生じる。このようにして磁石の移動に伴って低温の凹みが高温側から低温側に移って最後に低温端に冷却をもたらす。これはちょうどモグラが穴を掘り進めるとき前の土を掘り出して

Fig. 5 a) Diagram of the cascade series of the refrigerator with $n=4$. b) an experimental set-up, 1) top view of the series of the Gd specimens and thermal switches on the adiabatic support, 2) iron yoke with permanent magnet pole-pieces.

その後に埋め戻しながら進むのに似ているのでモグラ方式と呼ぼう。これとは反対に磁石が右から左へ移動する場合には M_i の磁化によって発生する熱を、前方の M_{i-1} に積み上げながら磁石は進んでゆくので、これはブルドーザ方式とでも名付けられる。両者は基本的には同じ熱ポンプ効率を与える。

この Fig. 6-(a) の作動において一つの磁性体に着目すると①から⑤までの過程は、Fig. 6-(b) の $S-T$ グラフの上では一つのループ軌跡に対応している。このループの特徴は、各磁性体が磁化および消磁後に隣接磁性体と熱スイッチで ON OFF 接続を行うことにより、磁界印加による温度上昇、その後の磁界中冷却、消磁による温度低下、その後の（零）磁界中加熱の各過程が可能となっており、逆エリクソンサイクルに類似のループを形成している。つまり磁化消磁過程の位相の

Fig. 6 a) Operational diagram of the cascade series, and the temperature changes (ΔT) in process of the magnet (M) step-displacements. b) corresponding states to the refrigerator operation in entropy $S(H)$ -temperature T diagram.

Fig. 7 Measured time (t) flow chart of the temperature change ΔT at the cascade series terminal point.

ずれた左右隣接磁性体が蓄冷器、蓄熱器の役割を果たしている点に特色がある。

IV. 実験結果と検討

25 g の Gd 試料 (20mm 径 $\times$ 10mm 厚) を熱スイッチをはさんで 3 コおよび 4 コ縦列接続した系、さらにそれを 6 コにまでした場合、また 50 g (20mm 径 $\times$ 20mm 厚) Gd を 3 コ連結した系などについて、それぞれ真空槽内に装着して永久磁石 (Gd 25 g の場合は $\bar{H} \approx 6 \text{ kOe}$, 50 g の場合は $\bar{H} \approx 4 \text{ kOe}$) をステップ回転して実験を行った。Fig. 7 にはそのうち 25 g $\times$ 6 コの低温端に相当する 6 番目の Gd の温度 T_6 の時間変化の測定データを示す。

i) 1 サイクル内の温度変化

Fig. 7 の①-②-③-④-⑤ はそれぞれ Fig. 6 内の番号に対応して磁化、磁界中冷却、消磁、（零）磁界中加熱の各過程となっている。磁化、消磁による温度変化幅はこの場合 $\Delta T = 0.64 \pm 0.02 \text{ K}$ であった。他に 25 $\times$ 4 コの場合の実験では $\Delta T = 1.00 \pm 0.05 \text{ K}$ が得られた。この差は Fig. 3 に示されている、用いられた Gd 試料の特性の差に原因している。

この測定量 ΔT には熱スイッチ (Ag 板) の熱容量も関係しているので、Gd 単体の場合の温度変化に換算すると $\Delta T = 1 \text{ K}$ の場合は $\Delta T_{\text{Gd}} = 1.2 \text{ K}$ 程度となる。一方 Rosenblum らによる Gd についての既出のデータ $\Delta S (H = 6 \text{ kOe}) = 0.043 R$ の値は $\Delta T = T \Delta S / C = 2.1 \text{ K}$ を与える。誤差の点とはともかくとしてここでの測定値は約 60% 程度である。これは多結晶試料内の磁壁移動が弱磁場下ではより困難であり試料依存性が大きいことを示している。

一方 Benford らは $H = 70 \text{ kOe}$ による Gd 磁化熱を測定して $\Delta T (T = 300 \text{ K}) = 14 \text{ K}$ を報告している¹²⁾。

これと比較するとき、 T_C 近傍では $\Delta S \propto H^2$ の常磁性近似がまったく成立していないことが判る。

ii) 熱スイッチ特性

Fig. 7 の温度(T)–時間(t)特性に見られるように磁化、消磁による磁性体の温度変化は充分短い時間に生ずるが、その後の冷却、加熱の熱移動にはスイッチの緩和時間が関係して、②→③および④→⑤の曲線は隣接スイッチの熱伝達特性が表れている。これが熱ポンプサイクル効率の重要な決め手になっているので、とくに熱スイッチ S の特性を調べるために Gd–S–Gd の部分だけを切り離して S (Cu 19g) の ON および OFF 状態での両側の Gd(50g) の温度差 ΔT を測定した結果を Fig. 8 に示す。このグラフから $\Delta T = \Delta T_{\text{exp}}[-t/\tau]$, $\tau_{\text{ON}} = 115\text{sec}$, $\tau_{\text{OFF}} = 470\text{sec}$ を得た。またスイッチ部 S を除いて Gd 単体を $p = 5.5 \times 10^{-6}$ torr の真空槽内の断熱板上に支持したときの温度変化から $\tau_{\text{vac}} = 1,060\text{sec}$ が測定された。これらの熱緩和時間 τ から、熱拡散係数の表現 $\tau^{-1} = K/C$ を用いて試料への熱流入の伝達係数 K が求められる。

結局この実験装置では、放射による熱流入を $K_{\text{rad}} \sim 9\text{mW/K}$ と見積ると、断熱支持部および $p = 5.5 \times 10^{-6}$ torr 雰囲気を通じての熱伝導は $K_{\text{sus}} \sim 13\text{mW/K}$ 、またスイッチが OFF 状態でも近接した対向板間を通じての熱漏えいが $K_{\text{OFF}} \sim 28\text{mW/K}$ 程度、最後にスイッチ ON で対向面積 20cm^2 の極板圧迫による熱伝導(増加)分が $K_{\text{ON}} \sim 150\text{mW/K}$ と求められた。さきの2枚の銀板による予備実験結果と比較して K_{ON} が格段に小さいのは、装置内部のせまい空間にスイッチを組立てて $\tau_{\text{ON}}/\tau_{\text{OFF}} \geq 4$ のスイッチ比を得るためには構造上

Fig. 8 The time (t) relaxation process of the temperature difference ΔT between two Gd samples (50g) connected by thermal switch in ON and OFF state.

Fig. 9 Time process of the generating temperature difference ΔT across the cascade series in change of the step motion period τ of the magnet.

K_{ON} がかなり犠牲になる。また金属板の変形などにより必ずしもスイッチ板対向全面積で接触が行われなくなる。

iii) ステップ周期と冷却速度

Fig. 7 のような冷却実験において磁石のステップ移動周期 τ をどのように選べばよいか。いま熱スイッチの特性を示す $\tau_{\text{OFF}}/\tau_{\text{ON}}$ 比が充分に大きい ($\gg 1$) 場合には、磁化、消磁による熱の移動が効果的に行われ、しかも外部からの熱流入や逆流をなるべく防ぐ点から $\tau_{\text{ON}} \leq \tau \ll \tau_{\text{OFF}}$ の条件が考えられる。実際に磁石の移動くり返し時間 τ を変えて Gd(25g) 3コ連結の場合の高温端の同一位相点での温度差 δT_{13} の時間経過を測定して Fig. 9 に示す。この場合のスイッチ特性は $\tau_{\text{ON}} = 83 \pm 20\text{sec}$, $\tau_{\text{OFF}} = 300 \pm 50\text{sec}$ であったが、上記の予想通り $\tau = 90\text{sec}$ がもっとも冷却速度(効率)が大きく、その前後の $\tau = 30, 60$ および 120sec ではいずれも低下していることが認められる。

iv) 到達温度

Fig. 7 においてくり返しサイクルの同一位相点(例えば①, ⑤...)に注目すれば、時間経過とともに確かに温度が低下しているが8サイクル(30分)作動程度でほぼ定常に達している。これは温度低下による外部から

Fig. 10 The time development of temperature changes ΔT of each Gd (25 g) sample in the four-specimen cascade series.

の熱流入や逆流の増大と、この熱ポンプ系の排出熱能力が平衡に達したためとみられる。この実験の場合は低温端の到達温度低下は $\delta T \sim 0.4 \text{ K}$ ($H \sim 6 \text{ kOe}$) にしか達しなかった。その他の実験条件として Gd 25 g $\times$ 4 コの場合の各磁性体の温度変化 ΔT_{1i} (高温端 Gd 1 との温度差) の時間経過を Fig. 10 に示している。この場合には $\delta T_{14} = 0.46 \text{ K}$ を得ている。

このように Gd のカスケード接続数を大きくしても現在の実験条件では最低到達温度には有効に働いていない。これは磁性作業物質である Gd の量が少なくて熱排出能 $T \Delta S_V$ が小さいときは、縦列鎖がある長さ以上になると鎖長を通じての熱流入総量がこれを超える点より低温部の温度差は零となり δT には無効になるためと考えられる。この実験装置では上部が全面のぞき窓のためかなりの熱流入が見込まれる。

一方もし理想的な熱スイッチが得られて発生した磁化熱が逆流することなしに迅速完全に移動されるときは $\delta T_{1,n} \sim n \Delta T_0$ が期待されるが、現在得られている $\delta T_{1,n} \leq 0.5 \text{ K}$ は $\Delta T_0 \sim 1 \text{ K}$ に比べてあまりに小さい。これは熱スイッチの伝達能がわずかに $K_{ON} \sim 0.2 \text{ W/K}$ 程度のために $\tau \sim 10^2 \text{ sec}$ 程度の時間をかけても発生した磁化熱はあまり移動せず、また消磁後の低温部には外部からの熱流入が蓄積してそれが 10^{-2} Hz のゆっくりした熱ポンプ排出能に対して無視できない状況にあるとみられる。この点から今後、熱スイッチの改良がまず要求されている。それにより $\tau_{ON} \leq \tau$ の熱ポンプ作動周期 τ を短くすることができて、熱流入に比べて排熱速度が大きくなり、到達温度の低下と %カルノー

効率の向上が期待される。

これら一連の実験は九州大学低温物理研究室の秀島修*, 屋地靖人**, 平川孝昭*, 高垣哲也***, 井上優一, 種村文法****, 葉玉寿弥, 越智利彦の諸君の努力によるものである。

未踏加工技術協会において数年来、高温磁気冷凍研究会が催され多くの啓発と御親切を得ました。とくに長谷田泰一郎教授には本研究に一貫した御鞭撻をいただき、大塚泰一郎教授からは有益な御指摘を得ました。磁性材料については佐藤清雄教授より貴重なコメントと御教示が与えられています。皆様に深く感謝致します。

参 考 文 献

- 1) G. V. Brown: J. Appl. Phys. **47** (1976) 3673
- 2) B. M. S.: Physics Today (June 1979) 18
- 3) W. A. Steyart: J. Appl. Phys. **49** (1978) 1216
- 4) 岩間義郎: 未踏加工技術 **8** (1982) 4
- 5) S. S. Rosenblum, W. A. Steyart, and W. P. Pratt: Los Alamos Sci. Lab. Report LA-6581 (1977)
- 6) R. Radebaugh: J. Low. Temp. Phys. **27** (1977) 91
- 7) R. M. Bozorth: J. Appl. Phys. **38** (1967) 1366.
- 8) S. M. Benford: J. Appl. Phys. **50** (1979) 1868
- 9) 希土類元素合金の磁性については佐藤清雄氏のコメントに依る。
- 10) J. A. Barclay and W. A. Steyart: Los Alamos Sci. Lab. Report LA-8746 MS (1981)
- 11) Gd の市販試料純度については日本イットリウム K. 野呂氏のコメントに依る。
- 12) S. M. Benford and G. V. Brown: J. Appl. Phys. **52** (1981) 2110.

現所属 *富士通 K. K., **日本シュルンベルジュ K. K., ***マツダ K. K., ****松下電器 K. K.