エリクソン磁気冷凍用複合型磁気作業物質

橋本 巍洲, 葛原 徹, 佐橋政司*, 猪俣浩一郎*,
友清彬昶**, 矢山英樹**

東京工業大学理学部応用物理学科 東京都目黒区大岡山

*(株)東芝総合研究所金属セラミック材料研究所 神奈川県川崎市幸区東芝町1

**九州大学教養部物理教室 福岡市中央区六本松4-2-1

(1986年7月28日受理)

Investigation on a Complex Type of Magnetic Refrigerants
for the Ericsson Magnetic Refrigeration

Takasu HASHIMOTO, Tohru KUZUHARA, Masashi SAHASHI*, Koichiro INOMATA*,
Akihisa TOMOKIYO** and Hideki YAYAMA**

Dept. of Applied Physics, Tokyo Institute of Technology, Oh-okayama, Meguro, Tokyo

*Research and Development Center, Toshiba Co., Toshiba-cho, Saiwai-ku, Kawasaki, Kanagawa

**Dept. of Physics, College of General Education, Kyushu University, Chuo-ku, Fukuoka

(Received July 28, 1986)

Synopsis :

A complex type of magnetic refrigerant for the Ericsson cycle has been investigated. For the magnetic refrigerant in the temperature range above $\sim 15\text{K}$ we have to use the ferromagnetic material, which has the internal magnetic field to arrange its spin system as far as using a magnetic field of $\sim 6\text{T}$, because of increasing of the thermal excitation energy for spins $\sim kT$. Moreover, we have to select the Ericsson cycle instead of the Carnot cycle usually used in the low temperature range below $\sim 15\text{K}$, since the lattice entropy of a solid material in this range is not negligible in comparison with the magnetic entropy.

In order to form a high efficient Ericsson cycle that includes two kinds of iso-magnetic field processes, a new severe condition is required for the magnetic refrigerant, that is, the magnetic entropy change ΔS_J is constant in the refrigeration range. This condition, however, can not be satisfied by an usual homogeneous ferromagnetic substance.

In the present paper we first made clear from the theoretical analysis that the complex of the ferromagnetic materials, for instance $(\text{ErAl}_2)_{0.312}(\text{HoAl}_2)_{0.198}(\text{Ho}_{0.5}\text{Dy}_{0.5}\text{Al}_2)_{0.490}$, well satisfies the above condition.

On the basis of the analysis we have prepared a complex consisted of several $\text{RAl}_{2.15}$ compound layers with different rare earths R , such as $(\text{ErAl}_{2.15})_{0.312}(\text{HoAl}_{2.15})_{0.198}(\text{Ho}_{0.5}\text{Dy}_{0.5}\text{Al}_{2.15})_{0.490}$. For the complex we determine the magnetic entropy change ΔS_J and the entropy S from the specific heat measurement.

From these results we can conclude that the layer type complex material is most hopeful not only for the Ericsson type magnetic refrigerant but also for the regenerative material.

1. 序

磁気熱量効果を利用した磁気冷凍においては、現在、低温域のカルノー方式を用いた磁気冷凍の研究開

発が先行しているが¹⁾、これは、この方式の原理、機構、動作が非常に単純なこと、および、近い将来における低温域の高効率小型冷凍機の需要増に対する期待とに負うところが大きい。

しかしながら、冷凍域を20K近く、あるいはそれ以上に、拡大することは、通常の常磁性体と6 T程度の磁場を用いる限り、スピン系の熱励起エネルギー $\sim kT$ (k : ボルツマン定数, T : 温度) が、スピン準位の外磁場 B による分裂幅 $g\mu_B B$ (g : g 因子, μ_B : ボーア磁子) より大きくなるので、現在のカルノー方式では不可能である。もちろん、現在多用されている等方的弱反強磁性体 $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ (GGG)²⁾ の代りに、 g 因子に大きな異方性を持つ $\text{Dy}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (DAG)³⁾ の容易軸方向を利用するという便法もある。しかしこの場合も Dy^{3+} のスピンの1/2であるため、使用可能な磁気エントロピー変化 ΔS_J もそれ程大きくなく、その上、20K 近くでは格子エントロピー S_L も無視できなくなるので⁴⁾、特に熱源である高温流体と低温流体との混合損失の大きい磁性体移動型では、大きな冷凍出力が得られなくなる。

磁気エントロピー S_J に比較して S_L が無視できない、すなわち $S_J \leq S_L$ の関係が成立する領域においては、カルノーサイクルの代りに、Fig. 1 に示すような、二つの等温過程の間を二種の等磁場過程で結ぶエリクソンサイクルが威力を発揮する。このサイクルは、蓄冷器の助けを借り、等温磁化で放熱した後の等磁場過程 ($B_E \rightarrow C_E$) において、スピン系 $S_J(T, B)$ の温度変化分のみならず、 $S_L(T)$ の温度変化分をも

Fig. 1 The Carnot cycle ($A_C B_C C_C D_C$) and the Ericsson cycle ($A_E B_E C_E D_E$) shown on a schematic entropy-temperature diagram.

除去し、磁性体の温度を冷凍温度 (T_2) に迄下げ、吸熱過程 ($C_E \rightarrow D_E$) 後の等磁場過程 ($D_E \rightarrow A_E$) では、先に蓄冷器が除去したエントロピーを再び磁性体に戻し、出発時の状態へ返し1サイクルが完結するようなものである。

本研究は、磁気冷凍の冷凍域拡大に不可欠な蓄冷方式の研究の第一歩として、磁気作業物質の研究を行ったものであり、特にエリクソン用の磁気作業物質として、複合型強磁性作業物質が最も有効であることを理論的、実験的に明らかにし、今後の研究開発方向を示唆すると同時に、このような複合化物の新たな分野への応用についても言及したものである。

2. 理論的背景⁵⁾

我々が冷凍に使用可能な磁気エントロピー変化量 ΔS_J は、外磁場 B によるスピン準位の分裂幅 $g\mu_B B$ とスピンの熱励起エネルギー $\sim kT$ との比によって決まるが、6 T 程度の外磁場と g -因子が2で磁氣的相互作用が微弱なスピン系を使用する限り、 $\sim 15\text{K}$ 以上では、冷凍を行うに充分な ΔS_J は得られない。さらに $g_{\parallel} \sim 19$, $g_{\perp} \sim 0.5$ である Dy^{3+} イオンを含み、単軸異方性を持つ化合物常磁性体を使用するという便法を講じたとしても、たかだか20K がその限界である。

それ故 $\sim 15\text{K}$ 以上では、スピンを強磁性的に整列させようとする磁氣的相互作用

$$\mathcal{H} = -2 \sum_{i>j} \lambda_{ij} \mathbf{J}_i \cdot \mathbf{J}_j - g\mu_B \sum_i \mathbf{J}_i \cdot \mathbf{B} \quad (1)$$

を持つ磁性体を使用しなければならない。ここで J はスピンを表わし、 λ_{ij} は磁氣的相互作用パラメータで、 $\lambda_{ij} > 0$ である。このような磁性体の $\Delta S_J(T, B)$ は、先の論文⁶⁾ に示されたようにキュリー温度 T_C 近傍で鋭いピークを作る。その典型例として、等方的三次元強磁性体の代表である EuS の ΔS_J が、Fig. 2 に示されている。このような温度特性は、単一の磁性イオンを含む場合のみでなく、多種のイオンすなわち多種の J を含み、多くの λ_{ij} が存在する系であっても、均質な磁性体の場合には、必ず現われる特性である。

一方、二つの等磁場過程を含み、カルノー効率を満すような理想的エリクソンサイクルを構成するためには、Fig. 1 を参照すれば明らかなように、磁性体が具備しなければならない特性として、「強磁場および零磁場中の二つの等磁場過程 (Fig. 1 では $B_E \rightarrow C_E$ および $D_E \rightarrow A_E$ 過程) の各温度における放熱 ($B_E \rightarrow$

C_E) および吸熱量 ($D_E \rightarrow A_E$) は常に等しい」ことが要求される。これは言い換えると、サイクルを構成する温度範囲で、Fig. 2 中に点線で示したように、 ΔS_J の温度依存性がないことを磁気作業物質の特性として要求しているのである。

しかし上記の特性は、先に述べた均質強磁性体では全く満し得ないものである。このようなサイクルからの要請と磁性体の特性との差違に対処する手段として、幾つかの異った $\Delta S_J(T, B)$ を持つ磁性体を用い、個々の特性をそのまま生かし、 ΔS_J = 一定の特性を持つような複化合物を作る方法が考案され⁵⁾、これが本研究の原点となった。

このような複化合物を作製するためには、固溶体の組成制御によって、キュリー温度 T_C を任意に変えることができる磁性体系列が必要である。本研究では、我々が先にその特性を明らかにした RAI_2 系が選ばれた⁶⁾。この物質は、Fig. 3 にその ΔS_J が示されているように、 $ErAl_2$ から $DyAl_2$ まで全域で固溶体を作り、 T_C は $\sim 15K$ から $70K$ の範囲で任意に変化させることが可能な系列であり、本研究には、最も適した強磁性体系列の一つであると考えられるものである。

複化合物としては、Fig. 4 に示すような層状構造は選ばれたが、このような構造は、「臨界温度近傍において、著しく長くなるスピンの相関距離以上の長周期で組成変化させると、層を構成する磁性体個々の特性をそのまま保つことができるであろう」との推測から選択されたものである。一例として、 RAI_2 から、 $ErAl_2$, $HoAl_2$, $(Ho_{0.5}Dy_{0.5})Al_2$ の3種の化合物を選び、これ等のモル比を $0.312 : 0.198 : 0.490$ にして、Fig. 4 に示すような層状の複合焼結体を作った場合

Fig. 2 Temperature dependence of the magnetic entropy change ΔS_J of EuS obtained by using the molecular field approximation. The dotted line shows the temperature dependence of ΔS_J suitable for the Ericsson cycle.

Fig. 3 Magnetic entropy change ΔS_J of several compounds [(1) $ErAl_2$, (2) $HoAl_2$, (3) $(Ho_{0.5}Dy_{0.5})Al_2$, (4) $DyAl_2$] in the RAI_2 system induced by a magnetic field of 5T.

Fig. 4 Schematic configuration of layer type complex magnetic refrigerant.

に得られると予想される $\Delta S_J(T, B)$ を示すと、Fig. 5 の如くなる。この結果は、エリクソンサイクルに適した温度依存性を持つ ΔS_J が得られることを示しており、このような方法がエリクソン用磁気作業物質の作製に非常に有効な方法であることを明瞭に示したものである。

本研究では、このような理論的予測が、実現可能なものであることを実証するのがその目的である。

3. 実験

実用的見地から眺めると、焼結体を磁気作業物質に

使用する場合に問題となるのは、その充填率である。 RAI_2 化合物粉末の単純な焼結では高密度焼結体が得られないので、組成を $RAI_{2+\delta}$ とし、 RAI_2 粒間にある融点の低い RAI_3 のみを融解し固化する、いわゆる液相焼結法が用いられた。その充填率の δ 依存性を示すと Fig. 6 のようになり、この結果から⁷⁾、本研究で

Fig. 5 Temperature dependence of the magnetic entropy change ΔS_J expected for the layer type magnetic refrigerant $(ErAl_2)_{0.312} (HoAl_2)_{0.198} (Ho_{0.5}Dy_{0.5}Al_2)_{0.490}$ calculated from the experimental results shown in Fig. 3.

Fig. 6 Composition dependence of the density of the Dy-Al system produced by press and sintering method, along with the densities of ingots.

Fig. 7 X-ray powder diffraction patterns of $DyAl_{2.15}$ compared with those of $DyAl_2$ and $DyAl_3$.

は $RAI_{2.15}$ 系を使用することが決定された。

$RAI_{2.15}$ 系磁性材料は、Ar 雰囲気中でアーク溶解法を用いて合成し、均質化を計るために溶解、粉碎が数回繰り返され、最終的にはボールミルにて粉碎し、 $\sim 3\mu m$ 程度の均質微粉末が得られた。

合成された粉末試料のX線回折実験が行なわれ、回折パターン中には、鋭い RAI_2 の回折線と、 RAI_3 に相当すると考えられる弱い回折線とが重畳していることが確認された (Fig. 7)。

このようにして得られた幾種かの化合物粉末を層状に積み重ね、圧縮、焼結を行なった後に層間剥離が起きないようにするために、次のような方式が用いられた。第一層は $ErAl_{2.15}$ 粉末とアセトンとの混合体(スラリー)をプレス容器中に入れ平坦層を作り、次に他の化合物粉末、例えば $HoAl_{2.15}$ とアセトンとの混合体を乗せ、さらに次の層を同様に作るという手法を用い、Fig. 4 に示したと同様な層状構造を作った。

本研究では、 $ErAl_{2.15}$ 、 $HoAl_{2.15}$ 、 $(Ho_{0.5}Dy_{0.5})Al_{2.15}$ の比を 0.312 : 0.198 : 0.490 に選ばれたが、これは、 $RAI_{2.15}$ の詳細な磁気熱量特性が得られていないので、 RAI_2 の結果を基に算定されたモル比である。

上で述べたと同様な方法で作られた層状構造物を $2.1 \times 10^7 kg/m^2$ の圧力で圧縮し、Ar 雰囲気中において 1 時間加熱した。焼結体を層に垂直な面で切断し、電子線マイクロアナライザーで解析した組成変化を Fig. 8 に示す。この結果は、層間の約 $200\mu m$ の領域で固溶体ができているが、その他の領域では、初期の

組成がそのまま保たれていることを明らかに示している。

このような試料のエントロピーの温度変化を求めるために、比熱測定が行なわれた。比熱測定には、断熱容器中、試料に一定電力を加え、その温度変化の時間依存性をカーボングラス抵抗温度計で計測し、 (dT/dt) から比熱を求める方法が用いられた⁸⁾。計測の誤差は、零磁場の場合2%以下であることが、標準試料(Pb および Cu)の測定から確認された。しかし磁場中の測定の場合は、反磁場の補正が不充分であることから、2～5%の誤差が入ってくる。一般に強磁性体に外磁場が加えられた場合、試料に有効に働く磁場 B_{eff} は外磁場 B とは異り、次式で示されるように、反磁場係数 N と磁化 M に依存する関数として与えられる。

$$B_{\text{eff}} = B - NM \tag{2}$$

ここで N は大きな形状依存性を持ち、例えば円筒の場合は、軸長 l と半径 r との比、 (r/l) の大きさによって、0 から 1 の間で変化する。

この実験の場合には、もちろん外磁場は層面に平行方向に加え、 N が小さくなるように工夫してあるが、各層の T_c が異なるため N が温度依存性を持つことになり、正確な補正が行い得ないのである。したがって、本研究では、加えた外磁場の値をそのまま示してあるが、実際の試料に対する有効磁場 B_{eff} は、特に低温域において数%小さくなっていると考えられる。ただ

Fig. 8 Composition dependence of a layer type sintered composite along the axis perpendicular to the layer obtained by an electron probe X-ray micro analysis.

し、この誤差の予測値は、試料の形状から粗い近似を用いて得られたものである。

4. 結 果

Fig. 9 には、0, 1 および 5 T の磁場中における複合焼結磁性体 $(\text{ErAl}_{2.15})_{0.312} \cdot (\text{HoAl}_{2.15})_{0.198} \cdot (\text{Ho}_{0.5}\text{Dy}_{0.5}\text{Al}_{2.15})_{0.490}$ の比熱が示されている。外磁場が零の場合に現れている三つのピークは、複合物を構成している3種の化合物の相転移点における比熱異常に対応している。これ等のキュリー温度 T_c と RAl_2 系における T_c との比較が Table 1 に示されているが、前者の T_c が低温側へとずれている⁷⁾。

この理由については、現在 RAl_2 と混合している RAl_3 の微視的構造が明らかにされていないので、定量的に議論することはできない。しかし現在までに見いだされているいくつかの RAl_3 相においては、いずれの場合もスピン間の相互作用は、弱い反強磁性的なものである。また $\text{RAl}_{2.15}$ 系の相転移は、Fig. 9 から見る限り特定の T_c で明瞭に起っており、系全体に渉る強い協力現象が働いていると考えられる。このよ

Fig. 9 Temperature dependences of the specific heat of the layer type sintered composite of $(\text{ErAl}_{2.15})_{0.312} (\text{HoAl}_{2.15})_{0.198} (\text{Ho}_{0.5}\text{Dy}_{0.5}\text{Al}_{2.15})_{0.490}$ in several magnetic fields.

Table 1 Comparison between the Curie temperature (K) of the RAl_2 and the $\text{RAl}_{2.15}$ system

$\text{system} \backslash R$	Er	Ho	$(\text{Ho}_{0.5}\text{Dy}_{0.5})$
RAl_2	11.7	26.8	46.0
$\text{RAl}_{2.15}$	10.0	25.9	33.2

うな場合には、 RAI_2 系と RAI_3 系とが、均質に混合していると仮定してもよい。

このような系における RAI_2 および RAI_3 の濃度を c および $(1-c)$ とし、分子場近似を用いて磁気モーメントを求め、これを $1/kT$ で展開し第一項のみをとる Curie-Weiss 則と同程度の近似度で T_C を求めると

$$T_C = \frac{(2z/3k) \{ c^2 \lambda_{11} J_1^2 (J_1 + 1)^2 + (1-c)^2 \lambda_{22} J_2^2 (J_2 + 1)^2 + 2c(1-c) \lambda_{12} J_1 (J_1 + 1) J_2 (J_2 + 1) \}}{c J_1 (J_1 + 1) + (1-c) J_2 (J_2 + 1)} \quad (3)$$

と与えられる。ただし J_1, J_2 は RAI_2 および RAI_3 領域中のスピンを表わし、 $\lambda_{11}, \lambda_{22}$ および λ_{12} はそれぞれ J_1-J_1, J_2-J_2 および J_1-J_2 間の磁気的相互作用係数である。したがって、 $\lambda_{11} > 0, \lambda_{22} < 0$ の場合、 λ_{12} が、

$$2\lambda_{12} < \lambda_{11} \{ (1+c) J_1 (J_1 + 1) / c J_2 (J_2 + 1) \} + \lambda_{22} \{ (1-c) J_2 (J_2 + 1) / c J_1 (J_1 + 1) \}$$

の条件を満たすと系の T_C は低下する。Table 1 の結果は、上の条件の反映にほかならないと考えられる。

エントロピー S は、熱力学的定義に基礎を置くと、

$$S = \int_0^T \{ C(T, B) / T \} B dT \quad (4)$$

のように比熱 $C(T, B)$ から求めることができる。(4)式を用いて Fig. 9 から計算された結果は、Fig. 10 に示されている。この結果は、Fig. 10 に示すように、40K から 20K 領域にわたって、 $B=0$ および 5 T の二つの等磁過程における磁気エントロピー差 ΔS_J が、ほぼ一定であることを示しており、このような磁気作業物質の構成法が、エリクソン用作業物質作成に非常に有効であることを実証している。

Fig. 10 Temperature dependences of the entropy of the same composite as in Fig. 9 in several magnetic fields.

Fig. 11 Temperature dependence of the magnetic entropy change ΔS_J of the same composite as in Fig. 9. Dotted line shows the values of ΔS_J in Fig. 5, calculated from the experimental result of the RAI_2 system.

5. 考察

まず、今回得られた複合化合物の磁気エントロピー変化量 $\Delta S_J(T, B)$ について議論する。Fig. 11 に Fig. 10 から求められた 5 T の外磁場を加えた場合の $\Delta S_J(T, B)$ が示されている。点線で示されたのが、 RAI_2 系の結果に基礎を置いた複合化合物の設計値であり、実線が実験値である。両者に相違が生じた原因は、設計の基礎としたのが RAI_2 系の結果であり、 $RAI_{2.15}$ 系では、部分的に RAI_2 と RAI_3 が固溶体を作ったために、この系の磁性が RAI_2 の磁性と多少異ったことに起因するものである。したがって、実際の場合には、 $RAI_{2.15}$ 系の結果を基に設計すれば良いのであり、この差異は問題とするに足らない。

むしろここで強調したいのは、3種の磁性体を用いた層状複合化合物でも、かなりの温度範囲に涉って ΔS_J の平坦化は可能であり、その相互のモル比を変えることによって、 ΔS_J の温度依存性を任意に制御できることである。

特に後者の任意の $\Delta S_J(T, B)$ が設計可能であるという特性は、非常に重要である。これまでの議論では、理想エリクソンサイクルのみを考えてきた。しかし実際にサイクル運転をする場合には、1 cycle/sec 程度の運転速度が予想されるが、このような速度で二つの等磁場過程を経る際には、準静的過程ではないので必ずエントロピー生成を伴い、これが温度依存性を持つことも充分予測される。このようなサイクルにおいては、必ずしも Fig. 11 に示すような平坦な温度依存性

を持つ $\Delta S_J(T, B)$ が適当であるとは限らず、適当な温度依存性を持たせる必要が生じる。このような場合でも、複合物を構成する磁性体の種類を増し、モル比を適当に選べば、どのような要求にも対応できるという利点をこの方法は持っている。

以上の考察から、このような複合化の方式は、磁性体の S_J の優れた制御方式であると考えられるが、このことをより鮮明にするため、最近エリクソン用として研究が始められているアモルファス磁性体の特性⁹⁾との比較を行なっておく。アモルファス磁性体は、原子配列の規則性を乱し、磁性体中の磁氣的相互作用、すなわち (1) 式中の λ_{ij} の強度および符号に空間分布を持たせたものであるということが出来る。したがってその相転移は、均質磁性体の場合程は明瞭でなく、その $\Delta S_J(T, B)$ も、Fig. 2 の鋭いピークはなだらかなものになる。しかし相転移温度は存在するので、平坦にはならない。

このような特性は、確かに均質磁性体よりエリクソンに適しているように見える。しかしピークが存在するため、2章で述べた条件は満されない。また磁気エントロピーは、磁氣的相互作用と同程度の広い分布を持つため、冷凍域以外の領域にも多くの ΔS_J が存在することになるので、活用できない ΔS_J も多い等の欠点を持つことになる。これに対して複合物は、冷凍域に大部分の $\Delta S_J(T, B)$ が集中され、平坦化が容易であるので、磁気エントロピーの制御方式としてはより優れていると思われる。もちろん問題が全くないわけではなく、層間の伝熱特性向上等、幾つかの課題があり、その研究は現在進行中である¹⁰⁾。

最後に、このような複合化磁性体の用途について簡単にふれておく。特に低温工学材料に限ると、蓄冷材、あるいは超伝導の安定化材にその用途がある。低温、特に10K以下の領域になると、格子エントロピーが著しく低下するため、高い熱容量材を得るためには、新たな物理現象の応用を考えねばならなくなる。この候補の一つに考えられるのが、広い意味での磁性体の相転移であるが、特に相転移が協力現象である場合には、熱容量は相転移温度で鋭いピークを作る。この特性は、温度制御には不適当であり、このピークをある程度平坦化する方法としては、本研究で述べた複合物が最適であると考えられる。このような意味か

らも、さらに種々の特性、例えば伝熱特性の改善等も含めた複合化磁性体の研究の重要性は、今後益々増加するものと思われる。

本研究は、昭和60年、61年度の科学技術振興調整費による「超伝導・極低温基盤技術に関する研究」の一環として行なわれたものである。

参 考 文 献

- 1) 例えば、
C. Delpuech, R. Beranger, G. Bon Mar-dion, G. Claudet and A. A. Lacaze: Cryo-genics 21 (1981) 579. H. Nakagome, N. Tanji, O. Horigami, T. Numazawa and T. Hashimoto: Adv. Cryog. Engr. 29 (1984) 583.
- 2) T. Hashimoto, T. Numazawa, Y. Watanabe, A. Sato, H. Nakagome, O. Horigami, S. Takayama and M. Watanabe: Proc. of ICEC 9 (1982) p. 26.
- 3) R. Li, T. Numazawa, T. Hashimoto, A. Tomokiyo, T. Goto and S. Todo: Adv. cryog. Engr. 32 (1986) 287.
- 4) T. Hashimoto, T. Numazawa, M. Shiino and T. Okada: Cryogenics 21 (1981) 647.
- 5) 特願 昭 59-060872
- 6) T. Hashimoto, K. Matsumoto, T. Kurihara, T. Numazawa, T. Tomokiyo, H. Yayama, T. Goto, S. Todo and M. Sahashi: Adv. Cryog. Engr. 32 (1986) 279.
- 7) M. Sahashi et al.: J. Less. Comm. Metal 投稿中
- 8) A. Tomokiyo, H. Yayama, H. Wakabaya-shi, T. Kuzuhara, T. Hashimoto, M. Sahashi and K. Inomata: Adv. Cryog. Engr. 32 (1986)
- 9) 木村秀夫, 前田 弘, 佐藤充典, 深道和明: 第35回低温工学研究発表会予稿集48頁。
- 10) 佐橋政司, 丹生ひろみ, 猪俣浩一郎, 葛原徹, 橋本巍洲: 第35回低温工学研究発表会予稿集57頁。