

УСПЕХИ ФИЗИЧЕСКИХ НАУК**ЯДЕРНОЕ ОХЛАЖДЕНИЕ *)****Н. Курти, Ф. Н. Г. Робинсон, Ф. Зимон и Д. А. Спор**

Температуры, отстоящие от абсолютного нуля на величину порядка $0,001^{\circ}$, были получены в ряде лабораторий методом магнитного охлаждения, состоящего в адиабатическом (изэнтропическом) размагничивании веществ, обладающих электронным парамагнетизмом. Наинизшая температура, которая может быть практически достигнута этим путем, определяется наличием взаимодействий между электронными спинами (диполь-дипольного, обменного и т. д.). Вскоре после первых успешных экспериментов по магнитному охлаждению было высказано предположение^{1, 2} о том, что путем размагничивания системы ядерных спинов можно будет достигнуть значительно более низких температур, таких, при которых возникает упорядочение ядерных спинов.

Вопрос об осуществимости экспериментов по ядерному размагничиванию был довольно детально рассмотрен Зимомом³ в 1939 г. Он указал, что для заметного уменьшения энтропии системы ядер потребуются магнитные поля порядка 50 000 эрстед и температуры порядка $0,01^{\circ}\text{K}$.

Первая часть эксперимента по ядерному охлаждению должна состоять в намагничивании, т. е. поляризации ядерных спинов. Халбан⁴ в 1937 г. обратил внимание на возможность использования систем ориентированных ядер в исследованиях по ядерным реакциям, а Спирс⁵ рассчитал ожидаемое угловое распределение интенсивности излучений ориентированных радиоактивных ядер. Поскольку эксперименты такого рода не связаны с необходимостью производить размагничивание, для ориентирования ядер можно в этом случае воспользоваться атомными и молекулярными полями. Был предложен и осуществлен экспериментально целый ряд таких методов; их описание можно найти в обзорной статье Амблера и Хадсона, опубликованной в 1955 г.⁶ Позднее Даббс, Робертс и Бернштейн⁷ (1955), используя внешнее магнитное поле, поляризовали ядра натрия. Из различных экспериментов такого типа были получены сведения о спинах и четности возбужденных состояний примерно десятка ядер.

Ввиду успешного применения этих методов работа по ядерному размагничиванию в Кларендонской лаборатории после первого эксперимента этого рода, выполненного Хаттоном и Роллином⁸ (1949 г.), была, естественно, отодвинута на второй план. Указанные авторы произвели размагничивание кристалла фтористого кальция от начального поля в 4000 эрстед при $1,2^{\circ}\text{K}$ до 500 эрстед. Температура системы спинов ядер фтора определялась по величине сигнала ядерного резонанса. Было найдено, что эта температура падает до $0,17^{\circ}\text{K}$ и затем вновь поднимается до $1,2^{\circ}\text{K}$ со временем релаксации, обусловленным взаимодействием спинов с решеткой, равным 60 сек. Однако в этих экспериментах уменьшение энтропии системы ядерных спинов было крайне малым ($10^{-4}\%$) сравнительно с энтропией, которой обладает решетка, поэтому заметного охлаждения всей системы в целом произойти не могло. Эти замечания

*) Nature 178, 450 (1956). Перевод Р. А. Ченцова.

относятся также к серии остроумных экспериментов, описанных в 1951 г. Паундом, Перселлом и Рамси⁹.

В более позднее время интерес к этой проблеме возобновился, и нам удалось несколько продвинуться в сторону реализации конечной цели. Эта цель состоит в том, чтобы добиться заметного уменьшения энтропии системы ядерных спинов под действием внешнего магнитного поля и, измеряя температуру, которая будет достигнута при последующем размагничивании, получить таким путем сведения об ядерных взаимодействиях в твердых телах.

Ядерное охлаждение включает в себя следующие этапы. Вещество, обладающее ядерным парамагнетизмом, намагничивается в сильном магнитном поле, и выделяющаяся теплота намагничивания поглощается «теплопоглотителем», находящимся при температуре около $0,01^\circ \text{K}$. Далее поле уменьшается до нуля, и, если этот процесс происходит адиабатически, система ядерных спинов охлаждается до температуры, определяемой начальной температурой, приложенным полем и ядерными взаимодействиями.

Роль теплопоглотителя при температуре в $0,01^\circ \text{K}$ может играть только материал, обладающий электронным парамагнетизмом и предварительно подвергнутый размагничиванию (от нескольких десятков тысяч эрстед при температуре около 1°K) до практически нулевого поля. Поскольку ядерный образец должен подвергаться намагничиванию, теплопоглотитель необходимо располагать где-то в стороне от этого образца. Даниэлс¹⁰ сконструировал соленоид с водяным охлаждением, способный создавать поля, необходимые для экспериментов по ядерному размагничиванию, и устроенный таким образом, что на расстоянии 23 см от центра катушки поле спадает до величины, меньшей $0,1\%$ величины поля в центре, в области, достаточной по величине для размещения теплопоглотителя. Такой магнит использовался в описываемых ниже экспериментах.

Для того чтобы теплота намагничивания ядер могла быть передана теплопоглотителю в разумное время (скажем, не больше получаса), прежде всего необходимо, чтобы время релаксации системы ядерные спины — решетка было достаточно коротким. Этого легко достигнуть, если пользоваться образцом из металла, поскольку известно^{8, 11}, что в металлах это время — порядка секунд при 1°K и, как можно ожидать, будет порядка минут при $0,01^\circ \text{K}$.

Однако если используется металл, то существенно необходимыми являются меры предосторожности против нагревания образца токами Фуко, возникающими при случайных колебаниях в величине магнитного поля и при изменении магнитного потока в процессе размагничивания. Нагревание, вызванное первым источником, может быть до некоторой степени устранено, если для питания магнита пользоваться очень стабильным источником постоянного тока и окружить криостат толстым медным экраном. Нагревания, связанного с действием второй причины, можно избежать лишь разделяя образец на большое число изолированных частей. Поясним важность этих предосторожностей на численном примере: общая теплота ядерного намагничивания медного цилиндра диаметром 1 см и длиной 5 см в магнитном поле напряженностью 30 000 эрстед при $0,01^\circ \text{K}$ имеет величину порядка 10^3 эргов, тогда как тепло, выделяющееся в цилиндре в процессе уменьшения этого поля до нуля за время 2 мин, превосходит эту величину примерно в 100 раз.

Курти¹² рассмотрел различные типы теплопроводов и пришел к заключению, что для передачи тепла намагничивания должен оказаться пригодным медный теплопровод разумных размеров. Медь не только является материалом, легко доступным в виде тонкой изолированной проволоки, но и обладает также желательными ядерными свойствами (см., например, работу³). Поэтому удобно использовать медь и в качестве теплопровода и в качестве самого рабочего вещества в ядерной ступени охлаждения. В этом случае ядерный образец может быть осуществлен просто в виде продолжения теплопровода.

Передача тепла от теплопровода к парамагнитной соли, являющейся теплопоглотителем, и паразитный приток тепла к образцу были двумя главными камнями преткновения в этом исследовании.

Известно^{13, 14}, что теплообмен между полосками медной фольги и спрессованной парамагнитной солью при соприкосновении их между собой на макроскопической площади A может быть выражен формулой

$$Q = \alpha A (T_1^3 - T_2^3), \quad (1)$$

в которой T_1 и T_2 — температуры соприкасающихся поверхностей, а α имеет порядок $10^3 \text{ эрг см}^{-2} \text{ град}^{-3} \text{ сек}^{-1}$. Поскольку мы хотели отвести количества тепла порядка 1000 эргов за несколько минут при $0,01^\circ \text{ K}$, площадь контакта должна была бы, очевидно, составлять несколько сотен квадратных сантиметров. Предпринятые на ранней стадии исследований Робинсоном попытки достигнуть такой теплопередачи, используя полоски медной фольги либо медную проволоку и впрессовывая их в порошкообразные хромокалиевые квасцы, окончились неудачей. Можно было сравнительно просто достигнуть поверхностей контакта порядка $10\text{--}50 \text{ см}^2$, пригодных для работы при температурах выше $0,1^\circ \text{ K}$, но значительно увеличить эту площадь оказалось практически невозможным. Однако Робинсон¹⁵ обнаружил, что можно достигнуть эффективности теплового контакта, соответствующей той же формуле (1), но без применения давления, если смешать квасцы с глицерином и водой, превратив их таким путем в глинообразную массу. В таком случае можно осуществить конструкцию с парамагнитной солью, в которую погружена сравнительно сложная система полосок фольги или проволок и, таким образом, получить большую площадь контакта. Пользуясь этой методикой, Курти и Спор построили образец и осуществили с ним эксперимент, к описанию которого мы теперь переходим. (Этот эксперимент представляет собой часть диссертации на степень доктора философии, которая будет представлена Спором Оксфордскому университету.)

На рис. 1 воспроизведена фотография образца и держателя, в котором он покоится. Здесь же приведен схематический чертеж, отображающий существенные черты конструкции. Теплопровод, связывающий верхнюю и нижнюю части прибора, состоит из 1540 эмалированных медных проволочек (диаметром $0,121 \text{ мм}$), верхние концы которых равномерно распределены по поперечному сечению смеси глицерина с хромокалиевыми квасцами (в количестве около 16 г), заключенной в перспексовый контейнер. Было подсчитано, что площадь контакта между металлом и смесью составляет 400 см^2 . Нижние концы проволок четырехкратно сложены на длине около 7 см , образуя «ядерный образец»; таким образом, последний содержит приблизительно $0,75$ грамм-атома меди.

В этом эксперименте, носившем предварительный характер, между обеими ступенями не было никакого теплового ключа. Наличие теплового сопротивления между теплопроводом и парамагнитной солью, а также предполагаемая вели-

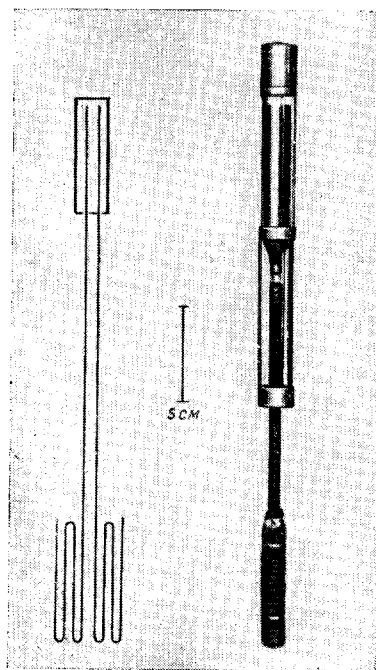


Рис. 1.

чина спин-решеточного времени релаксации позволили производить измерения температуры системы ядер после размагничивания и до того, как эта система вновь отогреется до температуры теплопоглотителя (процесс, занимавший во времени 2—3 мин).

Система, изображенная на фотографии, была смонтирована внутри свободно подвешенной «капсулы», состоявшей из латунной трубки с двойными стенками, верхняя часть которой содержала 25 г марганцево-аммониевого сульфата; последний подвергался охлаждению путем размагничивания одновременно с хромокалиевыми квасцами. Нижняя часть капсулы, окружающая ядерную ступень, поддерживалась в хорошем тепловом контакте с марганцево-аммониевой солью посредством жидкого гелия, а также тонких медных проволок, расположенных продольно между стенками латунной трубки. Капсула имела своим назначением уменьшить паразитный теплоподвод к системе, связанный с вибрациями, конденсацией газа и подводом тепла сверху по стеклянным подвесам. Проведенные вначале эксперименты с применением капсулы и образца, в котором свернутая часть из проволок была заменена цилиндром церий-магниевого нитрата (использовавшегося в качестве магнитного термометра), показали, что теплоподвод к нижней части теплопровода составляет около 1 эрга в минуту. Кроме того, эти эксперименты показали, что нижний конец теплопровода через 10 мин после размагничивания приобретает температуру в $0,011^\circ\text{K}$. По наклону кривых охлаждения и известной теплоемкости церий-магниевого соли удалось установить, что теплопередача между обоими солями и теплопроводом приблизительно соответствовала формуле (1).

Температура системы ядерных спинов определялась по результатам измерений магнитной восприимчивости этой системы, выполненных баллистическим методом. При этом предполагалось, что восприимчивость подчиняется закону Кюри. Калибровка была получена расчетным путем, исходя из теоретического значения ядерной восприимчивости меди ($\chi = \frac{3,74 \cdot 10^{-7}}{T}$ на грамм-атом) и чувствительности измерительной схемы. Последняя была определена путем выполненных при водородной температуре измерений с образцом марганцево-аммониевого сульфата, совпадавшим по размеру с ядерным образцом. Для поля первичной катушки в 7,8 эрстеда калибровка может быть выражена формулой

$$\delta_N = 3,4 \cdot 10^{-5} / T \text{ см.} \quad (2)$$

К сожалению, оказалось невозможным прокалибровать измерительную схему обычным путем, посредством наблюдения баллистических отбросов гальванометра при различных известных температурах выше $0,01^\circ\text{K}$. Частично это объясняется чрезвычайно малой величиной ядерной восприимчивости в этой калибровочной области, а частично тем, что при этих температурах ядерная восприимчивость замаскирована влиянием восприимчивости, связанной, по-видимому, с парамагнитными примесями в медной проволоке (сравни¹⁶) и в изоляции. Интерпретация результатов баллистических измерений осложняется также близостью значительных масс парамагнитного материала в теплопоглотителе и в капсуле. Влияние, оказываемое на измеряемую величину восприимчивости этими массами и парамагнитными примесями, было определено в контрольном эксперименте, в котором ядерный образец был расположен вне зоны влияния поля первичной катушки.

В эксперименте по ядерному охлаждению вначале производилось охлаждение электронной ступени (теплопоглотителя) путем адиабатического размагничивания приблизительно от 1°K и 20 000 эрстед до $\sim 0,01^\circ\text{K}$. Затем ядерный образец медленно намагничивался в полях различной величины — до 28 000 эрстед. Результирующее понижение энтропии для этого поля было около 1% общей ядерной энтропии, составляющей $2,8 \text{ кал/град}$ на грамм-атом. Поле поддерживалось при своем максимальном значении в течение некоторого

времени, изменявшегося в пределах от 5 до 20 мин, и затем уменьшалось до нуля со скоростью, менявшейся в пределах от 500 до 1000 эрстед в секунду. Отсчеты баллистического отброса начинались примерно через 13 сек после того, как поле достигало нулевого значения, и далее производились каждые 10 сек.

На рис. 2 баллистические отбросы δ_N , полученные при обращении направления поля в 7,8 эрстеда, изображены как функция времени, прошедшего с момента полного размагничивания. На рисунке показаны также соответствующие значения T , вычисленные по формуле (2). Различные кривые соответствуют различным значениям начального поля, указанным в таблице (см. ниже). Производя обратную экстраполяцию этих кривых до нулевого времени, можно определить магнитную температуру, достигаемую непосредственно после размагничивания. Как видно из рассмотрения указанных кривых, в случае наибольшего из использовавшихся полей эта температура составляла около $20 \cdot 10^{-6}^\circ \text{K}$.

Мы уже упоминали, что парамагнитные примеси могут давать восприимчивость того же порядка, что и восприимчивость, обязанная системе ядер. Однако представляется мало вероятным, чтобы большие относительные изменения восприимчивости, наблюдающиеся после размагничивания, могли быть вызваны этой причиной. Для того чтобы наблюдались такие большие баллистические отбросы, электронный парамагнетик должен был бы быть близок к идеальному поведению; но даже и в этом случае нельзя было бы ожидать заметного изменения в энтропии (и следовательно, дальнейшего возрастания отклонений) для значений H/T , больших, чем примерно 50 000 эрстед/градус (различие в теплоте намагничивания грамм-атома идеального электронного парамагнетика для $H/T = 300\,000$ и $H/T = 2\,300\,000$ эрстед/градус составляет 10^{-9} эрга при $T = 0,012^\circ \text{K}$). Однако рассмотрение рис. 2 показывает, что для возрастающих значений H/T вплоть до 2 300 000 эрстед/градус получались все более и более низкие температуры.

Если можно допустить, что закон Кюри выполняется даже при самых низких температурах, достигаемых в процессе этого эксперимента, то можно вычислить значение температуры θ_N , характеризующей ядерные взаимодействия³. Если T_i — начальная температура, H_i — значение поля перед размагничиванием и T_f — температура, достигаемая непосредственно после размагничивания, то θ_N определяется соотношением

$$\theta_N = T_f \frac{\mu H_i}{k T_i}, \quad (3)$$

в котором μ — магнитный момент ядра. Принимая $T_i = 0,012^\circ \text{K}$ и используя пунктирные линии на рис. 2, полученные экстраполяцией, для определения T_f ,

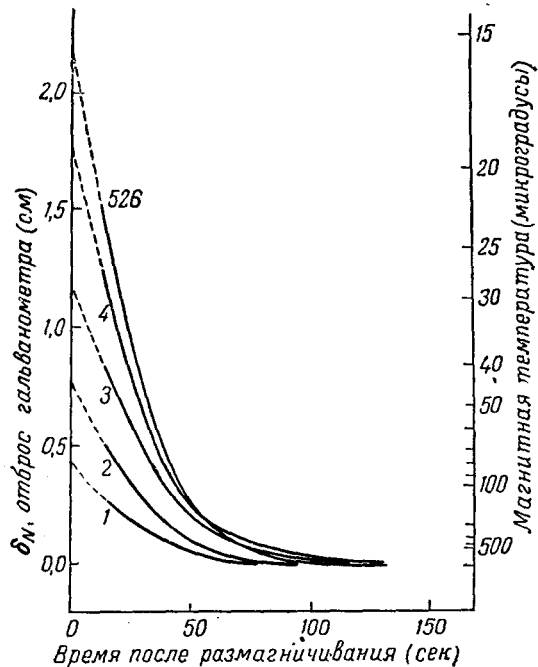


Рис. 2.

мы получаем значения θ_N , приведенные в таблице для различных кривых, показанных на рис. 2:

Кривая	1	2	3	4	5	6
Начальное поле (кило-эрстед)	3,48	6,95	10,4	13,9	20,9	27,8
$\theta_N \cdot 10^6$	1,94	2,18	2,11	1,87	2,26	3,00

Из рассмотрения этой таблицы видно, что результаты, полученные в разных сериях измерений, находятся в приблизительном согласии друг с другом. Среднее значение θ_N , а именно $2,3 \cdot 10^{-6} \text{ }^\circ\text{K}$, можно сравнить с вычисленным для меди по теории Фрелиха и Набарро¹⁷ значением ($4 \cdot 10^{-6} \text{ }^\circ\text{K}$) температуры, соответствующей аномалии, связанной с взаимодействием ядер.

На основе описанного эксперимента невозможно решить, принимают ли участие в охлаждении также электроны проводимости и решетка. Скорость отогрева совместна как с оцененным значением времени релаксации системы ядерные спины — решетка, так и с коэффициентом теплопередачи между ядерной ступенью и теплопоглотителем. Можно привести два аргумента в пользу гипотезы о том, что электроны принимают участие в охлаждении и что, следовательно, во всем образце устанавливается тепловое равновесие (решетка, во всяком случае, обладает ничтожно малой теплоемкостью). Один аргумент состоит в следующем: если бы охлаждение и последующий отогрев были обязаны только ядерным спинам, то δ_N (т. е. $1/T$) должно было бы линейно зависеть от времени ввиду того, что ядерная теплоемкость зависит от температуры, как $1/T^2$. Как можно видеть из рассмотрения рис. 2, дело обстоит не так (по крайней мере, при более высоких температурах), и кривые указывают на возрастание теплоемкости с температурой. Далее, в механизме, вызывающем рассмотренную Фрелихом и Набарро аномалию, принимают участие и электронные спины. Если бы это было не так, ожидаемая аномалия должна была бы наблюдаться при значительно более низкой температуре ($\sim 10^{-7} \text{ }^\circ\text{K}$), что противоречит значению, рассчитанному на основе полученных результатов.

Описанные эксперименты показали, что, используя ядерное размагничивание, можно получать температуры более низкие, чем те, которых можно достигнуть при помощи размагничивания электронных парамагнетиков. Кроме того, они позволили получить прямым путем данные о взаимодействии между ядрами в металлах. Поэтому было сочтено целесообразным описать эти первые поисковые эксперименты, которые мы надеемся в соответствующее время усовершенствовать (например, путем использования теплового ключа), а также распространить, кроме меди, на другие материалы. Следует подчеркнуть, что значение экспериментов описанного типа заключается не столько в малости получаемой температуры, сколько в том, что можно надеяться этим путем получить сведения о поведении ядерных спинов в твердых телах и о их взаимодействии с окружающей средой.

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. C. J. Gorter, Phys. Zeits. **35**, 923 (1934).
2. N. Kurti, F. E. Simon, Proc. Roy. Soc. A **149**, 152 (1935).
3. F. E. Simon, Le Magnetism, 3, 1 Strasbourg, 1940.
4. H. Halban, Nature **140**, 425 (1937).
5. J. A. Spiers, Directional Effects in Radioactivity, Ontario, National Res. Coun. Canada, 1949.

6. E. Ambler, R. P. Hudson, Rep. Prog. Phys. **18**, 251 (1955).
 7. J. W. T. Dabbs, L. D. Roberts, S. Bernstein, Phys. Rev. **93**, 1512 (1955).
 8. J. Hatton, B. V. Rollin, Proc. Roy. Soc. A **199**, 222 (1949).
 9. R. V. Pound, Phys. Rev. **81**, 156 (1951); N. F. Ramsey, R. V. Pound, Phys. Rev. **81**, 278 (1951); E. M. Purcell, R. V. Pound, Phys. Rev. **81**, 279 (1951).
 10. J. M. Daniels, Thesis, Oxford (1953); Brit. J. App. Phys. **4**, 50 (1953).
 11. N. Bloembergen, Physica **15**, 588 (1949).
 12. N. B. Kurti, Les Phénomènes Cryomagnétiques, 27, Collège de France, Paris, 1948.
 13. E. Mendoza, Les Phénomènes Cryomagnétique, 53, Collège de France, Paris, 1948.
 14. B. Goodman, Thesis, Cambridge, 1951.
 15. F. N. H. Robinson, Thesis, Oxford, 1954.
 16. R. Bowers, Phys. Rev. **102**, 1486 (1956).
 17. H. Fröhlich, F. R. N. Nabarro, Proc. Roy. Soc. A **175**, 382 (1940).
-