

Title	極低温強磁場下の比熱測定
Author(s)	小林, 達生
Citation	大阪大学低温センターだより. 1995, 92, p. 21-25
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/12579
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

極低温強磁場下の比熱測定

基礎工学部 小林 達生 (内線6446)

E-mail : tckobayashi@mp.es.osaka-u.ac.jp

1. はじめに

筆者は多重極限下の物性に興味を持ち、その最も単純かつ重要なマクロ測定の1つとして比熱測定を行っている。現在、筆者のグループで行われている比熱測定は強磁場 ($H < 13\text{T}$) 低温 ($T > 80\text{mK}$) 実験であり、圧力下 ($P < 2\text{GPa}$) の測定については開発の段階にある。ここでは、低温強磁場中の比熱測定について実験的なことに触れた後、 $S=1$ 次元ハイゼンベルグ反強磁性体 (ハルデンギャップ系) と重い電子系超伝導体の測定例をあげる。

2. 低温強磁場下の比熱測定

筆者のグループでは断熱法で実験を行っている。原理はごく単純である。まず、試料系 (試料、保持版、ヒーター、温度計) を外界と断熱状態に保ち、わずかのヒートリークに対してはサブヒーターで補償を行う。メインヒーターで系をパルス的に加熱した後での系内部での熱平衡への過程を観測し、系に加えたジュール熱が100%有効に使われたときの系の温度上昇を見積もる。

低温/強磁場実験は $^3\text{He}/^4\text{He}$ 希釈冷凍機に8Tあるいは14.5Tの超伝導magnetを取り付けて行う。磁場中の実験で唯一しかし重大な問題になるのは、抵抗温度計の磁場変化である。筆者のグループではcompensation coil付の超伝導magnetを用いており、磁場が打ち消されている場所に温度計を取り付けることで、抵抗の磁場変化を防いでいる。この問題のために、比熱測定を行っている研究者は数多くいるが、磁場中の測定となると筆者の知る限りわずかである。

3. ハルデンギャップ系

ハルデンギャップは $S=1$ の次元ハイゼンベルグ反強磁性体における一重項基底状態と励起状態間のエネルギーギャップである。 $S=1/2$ の場合はgaplessであり、現実の試料では有限のチェーン間相互作用のために低温で秩序状態に移行するが、ハルデンギャップ系ではチェーン間相互作用がエネルギーギャップより小さい物質で秩序状態は低温まで現れない。ところが磁場でギャップをつぶした状態では、秩序状態の出現が期待される。これが低温磁場中での比熱測定の動機である。

典型的ハルデンギャップ系として知られる $\text{Ni}(\text{C}_2\text{H}_8\text{N}_2)_2\text{NO}_2(\text{ClO}_4)$ (NENP) の磁気比熱を図1に示す¹⁾。5K以上の磁気比熱が理論計算と一致するように格子比熱は差し引いてある。ゼロ磁場ではハルデンギャップ Δ を反映した $C \sim \exp(-\Delta/T)$ の温度依存性を示す。磁場中ではギャップがつぶれる様子が観測されるが、さらに磁場をあげるとショットキー型の異常が現れ、再びギャップは増大する。この特徴的なエネルギーギャップの磁場依存性はESRでも観測されている^{2,3)}。これはNENPのジグザクの結晶構造に起因する磁場と垂直方向のstaggered磁場によるもので、数値計算によるギャップの磁場依存性

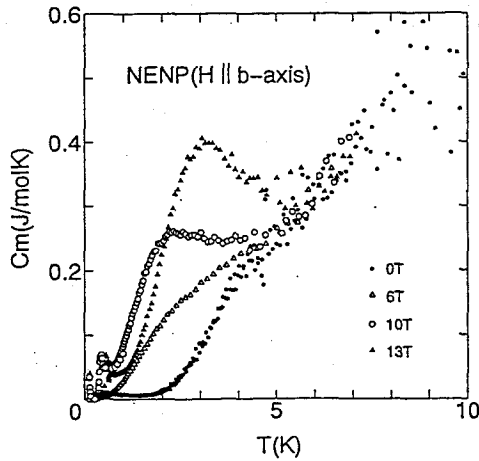


図1 ハルデンギャップ系NENPの磁気比熱 ($H \parallel$ chain-axis)。

は比熱とESRの実験結果とよく一致する⁴⁾。話は前後するが、これ以前に磁場中でのstaggered momentの出現はNMRで観測されており、staggered磁場による定性的な説明がなされていた⁹⁾。

その後、このような結晶構造の問題のないハルデンギャップ系で磁場中秩序を探索したが、未だ確認されていない。

4. 重い電子系超伝導体の比熱

重い電子系はCe, U化合物において低温で現れる有効質量 m が大きい電子系である。伝導電子が局在性の強い f -電子と混成し、Fermi面での状態密度が増大することによる。これによる低温比熱の大きな γT 項は、重い電子系において象徴的である。

重い電子系のいくつかの物質はさらに低温で超伝導状態に転移する。三宅さんの研究ノート(低温センターだより, No82)にもあるように、重い電子系超伝導体は「型にはまらない超伝導」のオンパレードである。低温で観測されるべき乗則は、BCS超伝導体とは異なるgaplessの状態密度の存在を示している。またこれらの系での磁性と超伝導の関連も興味深い。

4.1 $CeCu_2Si_2$

$CeCu_2Si_2$ ($T_c \sim 0.7K$) は超伝導状態と磁気秩序状態が微妙に絡んでいる系である。磁気秩序状態

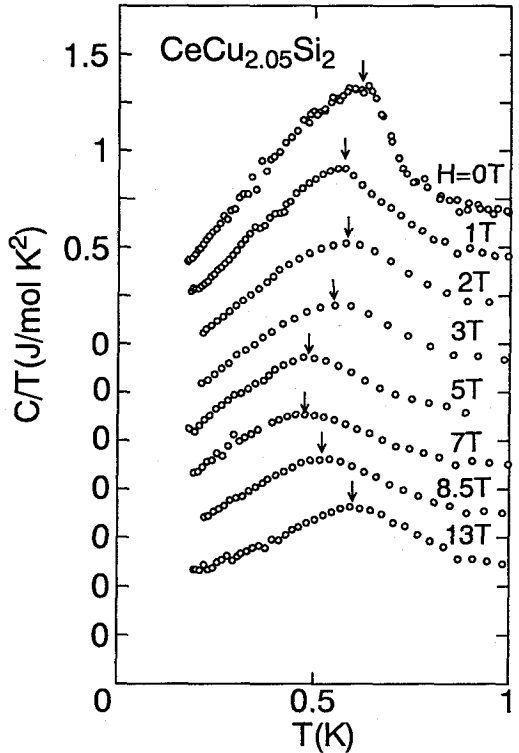


図2 重い電子系超伝導体 $CeCu_{2.05}Si_2$ の磁場-温度相図。

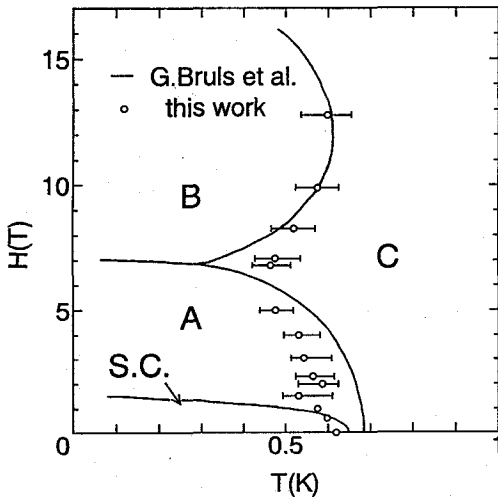


図3 多結晶 $\text{CeCu}_{2.05}\text{Si}_2$ の磁場中比熱。

は単純な長距離秩序状態ではなく、その詳細は明らかでない。この異常磁性は、NMR⁹⁾、磁気抵抗⁷⁾、 μSR ⁸⁾で観測されており、 H - T 相図(図3)に示すように異常磁性相Aの超伝導状態が存在することが分かっている⁹⁾。NMR測定により異常磁性を示すことが確認されている試料 $\text{CeCu}_{2.05}\text{Si}_2$ について比熱測定を行った¹⁰⁾。

13Tまでの磁場中比熱の結果を図2に示す。まず特徴的なことは T_c での飛びがブロードであること、そして $H_c \sim 2\text{T}$ 以上の磁場をかけてもブロードな比熱異常が残ることである。これから、このブロードな比熱異常は異常磁性によるものであると推測できる。またその比熱異常は磁場中で低温側にシフトして、 $H \sim 7\text{T}$ で最小値をとりさらに強磁場側では高温側に動いていく。Brulsらの弾性定数、熱膨張係数で求められた相図¹¹⁾にこの様子をプロットする。(図2)これらの実験から、強磁場磁性相Bの存在が明らかになった。比熱から分かることはその磁性相が単純な長距離秩序状態でないことである。弾性定数の変化から、磁性相Aと超伝導相は共存していないと言われている¹¹⁾。すなわち、超伝導状態に転移すると磁性は消滅する。さらに低温での比熱測定($H=0$)は、磁性と超伝導の共存の問題あるいは異方的超伝導ギャップを考える上で興味深い。また、この磁性と超伝導はCe, Cu, Siの組成比に敏感であることが知られており、圧力効果にも興味を持たれる。

4.2 UPt_3

図4は理学部大貫研で合成された UPt_3 純良単結晶の比熱である。 UPt_3 は「型にはまらない超伝導体」の代表格であり、2段の超伝導転移を示す($T_{c1}=0.53\text{K}$, $T_{c2}=0.48\text{K}$)^{12,13)}。これは p -波(triplet)の内部自由度から現れるものと考えられている。比熱と超音波から求められた超伝導相の H - T 相図を図5に示す¹⁴⁾。超伝導相は3つの相からなり、特徴的な四重臨界点を持つことが示されている。同様の結果から熱膨張の実験からも得られている¹⁵⁾。筆者らの比熱測定から求められた転移点を図5にプロットし比較してみると、良く再現されていることが分かる。

また中性子散乱の結果、この系では $T_N \sim 5\text{K}$ で反強磁性秩序状態に転移するが¹⁶⁾、圧力下で消

は単純な長距離秩序状態ではなく、その詳細は明らかでない。この異常磁性は、NMR⁹⁾、磁気抵抗⁷⁾、 μSR ⁸⁾で観測されており、 H - T 相図(図3)に示すように異常磁性相Aの超伝導状態が存在することが分かっている⁹⁾。NMR測定により異常磁性を示すことが確認されている試料 $\text{CeCu}_{2.05}\text{Si}_2$ について比熱測定を行った¹⁰⁾。

13Tまでの磁場中比熱の結果を図2に示す。まず特徴的なことは T_c での飛びがブロードであること、そして $H_c \sim 2\text{T}$ 以上の磁場をかけてもブロードな比熱異常が残ることである。これから、このブロードな比熱異常は異常磁性によるものであると推測できる。またその比熱異常は磁場中で低温側にシフトして、 $H \sim 7\text{T}$ で最小値をとりさらに強磁場側では高温側に動いていく。Brulsらの弾性定数、熱膨張係数で求められた相図¹¹⁾にこの様子をプロットする。(図2)これらの実験から、強磁場磁性相Bの存在が明らかになった。比熱から分かることはその磁性相が単純な長距離秩序状態でないことである。弾性定数の変化から、磁性相Aと超伝導相は共存していないと言われている¹¹⁾。すなわち、超伝導状態に転移すると磁性は消滅する。さらに低温での比熱測定($H=0$)は、磁性と超伝導の共存の問題あるいは異方的超伝導ギャップを考える上で興味深い。また、この磁性と超伝導はCe, Cu, Siの組成比に敏感であることが知られており、圧力効果にも興味を持たれる。

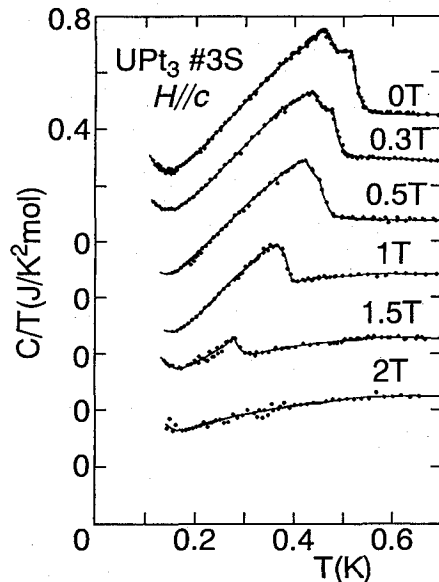


図4 純良単結晶 UPt_3 の磁場中比熱($H \parallel c$)。

減することが報告されており、それと2段転移の関連から、その $P-T-H$ 相図に興味を持たれる。既に実験例¹⁷⁻¹⁹⁾はあるが、まだconsistentな結果が得られていない。筆者らに課せられた課題である。

低励起状態については、 $T < 0.1\text{K}$ で比熱が上昇するため明らかではないが、これより高温側では T^2 の温度依存性があり $\gamma \sim 0$ である。低温での比熱上昇は他のグループでも確認されている^{20,21)}が現時点ではミステリーであり、これが明らかになって初めて正確な低励起状態についての議論ができると考えている。

5. おわりに

以上に見られるように、さらに低温あるいは圧力下での測定に興味を持たれており、この方向での測定の開発を急いでいる現状である。近い将来これらの測定が可能になり、多重極限下の研究の幅が広がることを期待している。

参考文献

- 1) T. Kobayashi, Y. Tabuchi, K. Amaya, Y. Ajiro, T. Yosida and M. Date : J. Phys. Soc. Jpn. **61** (1992)1772.
- 2) W. Lu, J. Tuchendler, M. von Ortenberg and J. P. Renard : Phys. Rev. Lett. **67** (1991)3716.
- 3) W. Palme, H. Kriegelstein, B. Luthi, T. M. Brill, T. Yosida and M. Date : Int. J. Mod. Phys. **B7** (1993)1016.
- 4) T. Sakai and H. Shiba : J. Phys. Soc. Jpn. **63** (1994)867.
- 5) M. Chiba, Y. Ajiro, H. Kikuchi, T. Kubo and T. Morimoto : Phys. Rev. **B44** (1991)2838.
- 6) H. Nakamura et al., J. Magn. Magn. Mater. **76-77** (1989)517 ; j. Phys. Condens. Matter **4** (1992)473, Y. Kitaoka et al., Physica **B206 & 207** (1995)55.
- 7) U. Rauchschwalbe et al., J. Magn. Magn. Mater. **63-64** (1987)347.
- 8) Y. J. Uemura et al., Phys. Rev. **B39** (1989)4726.
- 9) M. Lang et al., Phys. Scripta **T39** (1991)135.
- 10) T. C. Kobayashi et al., Physica **B206 & 207** (1995)600.

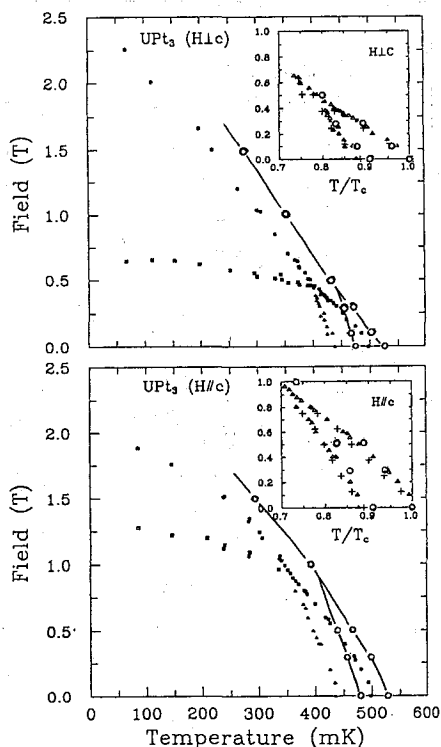


図5 UPt₃の磁場-温度相図 (○ : our data)。

- 11) G. Bruls et al., Phys. Rev. Lett. **72** (1994)1754.
- 12) R. A. Fisher et al., Phys. Rev. Lett. **62** (1989)1411.
- 13) R. A. Hasselbach et al., Phys. Rev. Lett. **63** (1989)93.
- 14) S. Adenwalla et al., Phys. Rev. Lett. **65** (1990)2298.
- 15) N. H. van Dijk et al, Phys. Rev. **B48** (1993)1299 ; j. Low Temp. Phys. **93** (1993)101.
- 16) G. Aeppli et al., J. Magn. Magn. Mater. **76 & 77** (1988)385.
- 17) M. Boukhny, G. L. Bullock, B. S. Shivaram and D. G. Hinks, Phys. Rev. Lett. **73** (1994)1707.
- 18) N. H. van Dijk, A. de Visser, J. J. M. Franse and L. Taillefer, Physica **B199 & 200** (1994)159.
- 19) M. Sieck, H. v. Lohneysen, L. Taillefer, Physica **B206 & 207** (1995)603.
- 20) E. A. Schuberth, B. Stricker and K. Andres, Phys. Rev. Lett. **68** (1992)117.
- 21) J. P. Brison et al., Physica **B199 & 200** (1994)70.