

複合極限下 dHvA 効果測定システムの開発

極低温科学センター 青木晴善 (aokih@mail.cc.tohoku.ac.jp)

1. はじめに

ド・ハースーフアン・アルフェン(dHvA)効果はフェルミ面、有効質量などの伝導電子の性質を調べるための強力な手段です。dHvA 信号は加えた磁場の逆数に周期的な磁化の量子振動です。振動数はフェルミ面の大きさ(磁場に垂直な極値断面積)に比例しています。信号強度は近似的に

$$\exp(-\lambda(m^*/m_0)(T+T_D)/H) \quad (1)$$

に比例します。ここで λ は 14.6 T/K であらわされる定数、 m^* は有効質量、 m_0 は電子の静止質量、 T は温度です。 T_D はディングル温度と呼ばれ、不純物など結晶中の欠陥による電子の散乱の大きさを表しています。したがって、大きな信号を得るためには、磁場 H を大きくし、温度 T を下げ、なおかつ純良な試料を用い T_D を小さくすることが必要です。特に、有効質量が大きい物質では強磁場、極低温状態での測定が必要不可欠です。

CeRu₂Si₂などの強相関 f 電子系と呼ばれている物質の物性は圧力に対して極めて敏感です。また、逆に圧力によって、物性を制御することができます。いくつかの強相関 f 電子系物質では反強磁性などの磁気秩序状態に圧力を加えていくと、次第に転移温度は減少し、ある圧力以上では消失してしまうものがあります。最近では消失する点(量子臨界点)近傍ではしばしば超伝導が観測され、その近傍での物性や電子状態が注目を集めています。

一方、軸性圧力も静水圧と同様に強相関 f 電子系の電子状態に大きな影響を与えます。特に、結晶の対称性を低下させるので、静水圧による効果との比較により、異方的な相互作用につい

での知見を得ることが可能です。また、結晶の高対称性に起因する現象に対しては有用な手段です。たとえば、最近、軌道の秩序に関する現象が注目を集めていますが、軌道の秩序は高対称性に起因して、基底状態で軌道の縮退が起きること由来しています。

物性の変化とともに電子状態の変化を観測することによって、物性の発現するミクロなメカニズムを探ることが可能です。

私たちは希釈冷凍機で発生する極低温と強磁場、さらに高圧を組み合わせた状況で dHvA 効果を観測することに、初めて成功しています。本稿では、静水圧下の dHvA 効果の測定システムとともに、最近開発した軸性圧力下の dHvA 効果測定システムの開発について紹介します。

2. システムの概要

我々の開発したシステムは、トップローディング方式の低温設備を対象としたもので、常温で圧力を加え、それをそのまま低温まで冷却するクランプ方式を用いています。図1は静水圧用クランプセルの概略図を示したものです。通常ピストンシリンダー方式と呼ばれるもので、到達圧力は他の方法に較べて低いですが、静水圧性の高い圧力を発生することが可能です。

試料はピックアップコイル内に置かれており、ピックアップコイルは圧力媒体を入れたテフロンカップ内に収容されています。シリンダー、ピストン、ナット等は CuBe で作られています。上部からピストンを通じてテフロンカップに圧力を加えると、カップが縮み圧力媒体を通じて試料に静水圧が加わります。ピストンが下降しますので、上部のグランドナットを締めて圧力

をクランプします。

dHvA 信号強度は結晶内のマイクロな歪み（モザイク構造、転位など）にも敏感です。そのため、圧力の静水圧性は重要です。圧力媒体はこれまでフロリナートが用いられることが多かったのですが、我々は色々とした結果、大阪市立大学の村田教授が見つけたダフニー7373 オイルとケロシンの1:1の混合液を用いています。常温から低温までゆっくり冷却(6-8時間)することによって、圧力印加による信号強度の劣化はおきませんでした。

圧力はSnの超伝導転位温度またはマンガニン線の抵抗によって校正しています。プラスチック製のコイルボビンが圧力容器内にかなりの体積を占めているので、圧力はこのコイルの低温での熱収縮および圧力による収縮の影響を受けます。in-situ あるいは同じコイルを入れた状態で圧力測定をすることが重要です。

dHvA 効果の観測には通常磁場変調法が用いられます。この方法は加えた外場 H を掃引しながら、通常 10mT 程度の小さな交流変調磁場 h

$\sin \omega t$ を重畳させます。磁化を M とすると、

$$M(H + \sin \omega t) \\ = M(H) + dM(H)/dt \cdot h \sin \omega t + \dots \quad (2)$$

とあらわされます。変調磁場で誘起された磁化の一次微分や高次の振動成分をピックアップコイルによって拾い、ロックインアンプによって検出する方法で、感度と信頼性の高い検出方法です。一方低温で高压容器を用いる場合は、変調磁場によって金属高压容器中に生じる渦電流による発熱が問題になります。特に強相関 f 電子系物質では有効質量が大きいために、式(1)からわかるように検出には希釈冷凍機を用いて発生する極低温が必要です。極低温ではクーリングパワーが落ちるとともに、冷媒と試料の間のカピツァ抵抗により熱伝導が悪くなり、より問題が深刻となります。したがって、過去、高压下の dHvA 効果の測定はたくさん行われてきましたが、ほとんどが液体 ^4He を冷媒として用いたものであり、私の知る限りでは液体 ^3He を冷媒として用いた測定例がただ一つあるだけです。

解決方法のひとつとしては金属を用いない高压容器を作製することです。高压を発生するためには材料の均質性と工作精度が極めて高いことが必要で、実際、製作して高压を加えてみると、微少なゆがみ変形により材料強度の問題が生じるより低い圧力で高压容器としては使いものにならなくなります。

もう一つの方法は十分低い変調周波数と小さな変調磁場を用いることです。簡単な計算を試みると、変調周波数を 10Hz 以下まで落とし、変調磁場の強度を数 mT 以下に落とせば、磁場の掃引による発熱と同じ程度に発熱を減少させることができることがわかります。このような条件では、検出感度と S/N 比は低下しますが、実際やってみると試料温度を数十 mK 以下に保ち、また、十分な強度の信号を検出できることが判りました。

有効質量は信号強度の温度変化から求めます。したがって、実際の試料温度を知ることが必要

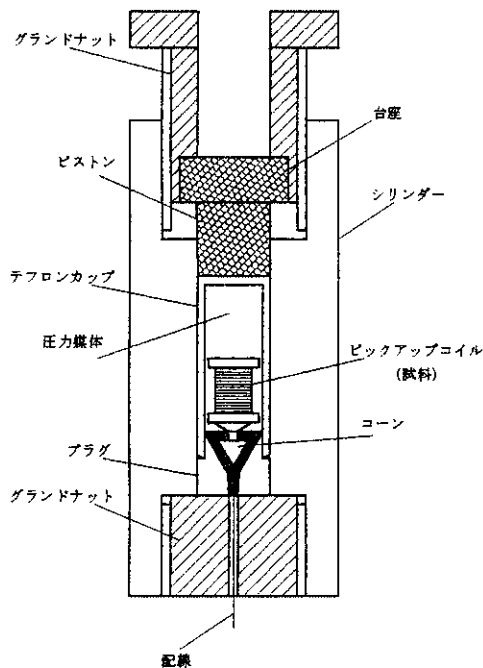


図1. 静水圧用セル

ですが、圧容器に試料が入っており、また、試料自身が金属なので変調磁場の影響を受け発熱するので、その測定ほとんど不可能です。このような場合には、発熱条件を少しずつ変え測定し、発熱ゼロの条件に外掃し有効質量を決定します。dHvA 振動の周波数はほとんどの場合温度変化はないと考えて良いので、周波数だけを測定したい場合には最も信号が大きくなる条件を選んで測定します。

図2は強相関 f 電子系物質の一つ $CeRu_2Si_2$ からの信号の様子を示しています。50mK、約 17 Tの強磁場で、かつ 6kbar の静水圧を加えた場合の信号です。常圧下では約 $50m_0$ の大きさであった、有効質量が 6kbar では $35m_0$ まで減少していることがわかります。現在では NiCrAl と CuBe の複合セルを用いて、20kbar の静水圧下での観測ができるようになり、いくつかの強相関 f 電子物質で量子臨界点近傍の電子状態の観測が可能となりました。

図3には軸性圧力を印加するためのセルを示しています。基本的な形は静水圧用のセルと似ていて圧力はグランドナットの穴を通してピストンによって加えます。上下のねじによって加えた圧力をクランプします。軸性圧力の印加による試料の上下方向の収縮は 1kbar の圧力あたり μm のオーダーですので、ネジの進み具合によって、この変形あるいは圧力を正確に固定するのはかなり困難です。スプリングを入れることによって、同じ圧力でもスプリングの収縮

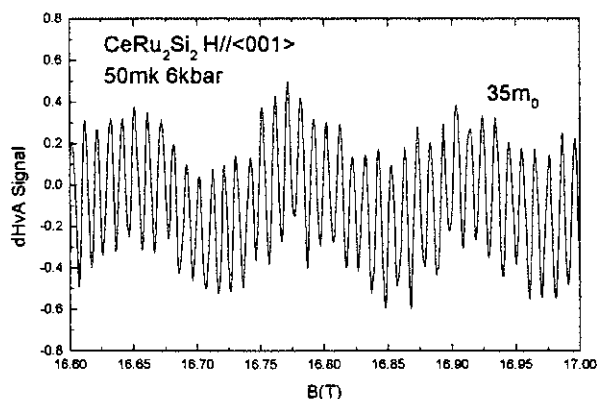


図2. 6kbar の静水圧下での dHvA 信号

によってネジの進みが大きくなり、圧力をより正確にクランプすることができます。試料は台座とバックアップの間にはさみ軸性圧力を加えます。低温では試料とセルの熱収縮率の違いにより、常温で加えた圧力が保持されない可能性があります。試料を載せる台座にはストレインゲージが貼ってあり、常温と低温での違いをモニターするようになっています。低温での校正は試料のかわりに同じ大きさの CuBe を挿入し、その時のストレインゲージの変化と試料を入れたときの変化から見積もります。これまで行った CeB_6 、 $Ce_3Pd_{20}Ge_6$ などの測定では、低温での圧力変化は 0.05kbar 程度と見積もられ、実際の実験には支障のない誤差範囲であることがわかりました。また、ストレインゲージの感度を高めるために、試料をはさむ台座は断面積を小さくしてあります。

軸性圧力を試料に均質に加えることはほとんど不可能で、マイクロに見れば歪みが生じています。 CeB_6 、 $Ce_3Pd_{20}Ge_6$ では軸性圧力を加える両端の研磨を綿密に行うことによって 4kbar 程

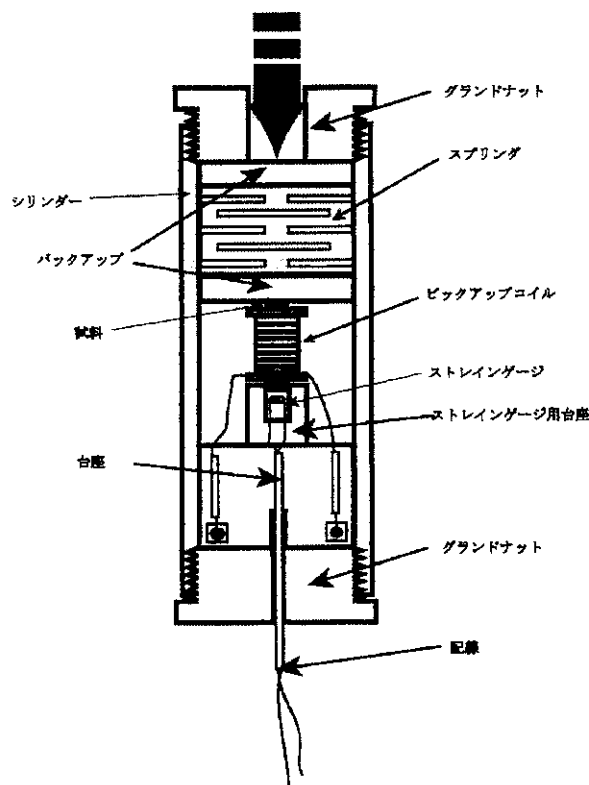


図3. 軸性圧力用セル

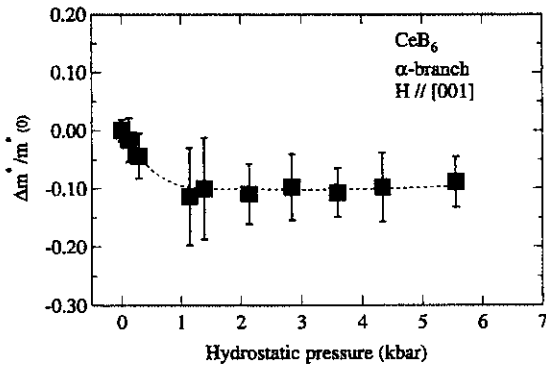


図4. 有効質量の静水圧に対する相対的变化

度までは破壊はしませんでした。多くの場合、 3 kbar 以上で試料の破壊に至ります。また、 $dHvA$ 信号は転位やモザイク構造などの欠陥によって敏感に減衰することが知られています。実際、信号強度は 3 kbar 程度の圧力の印加で常圧に較べて約半分程度に減少します。

金属性の圧力セルを用いているので、信号検出に磁場変調法を用いると、静水圧の時と同様に発熱の問題が生じます。しかし、軸性圧力セルでは試料が直接、 ^3He や希釈冷凍機の混合液に接しているために、静水圧の時と較べて問題は深刻ではありません。

図4、5はそれぞれ静水圧と軸性圧力を加えた時の CeB_6 の α 振動の有効質量の圧力変化を示しています。 CeB_6 の主要なフェルミ面は楕円体を6つつきあわせたような形をしており、 α 振動はこのフェルミ面から生じます。常圧の時の値からの差を常圧の時の値で規格化してして相対的な変化をあらわしています。両者とも 1 kbar 程度の低圧で急激に変化し、その後ほぼ一定となります。低圧での急激な変化は他の物質ではこれまで観測されておらず、 CeB_6 特有なものです。しかし、定性的な傾向は反対で、静水圧では有効質量は減衰し、軸性圧力では有効質量が増加しています。

強相関 f 電子系物質では f 電子と伝導電子の混成が物性に重要な働きをしていることが知られています。静水圧を加えると、混成が増加すると考えることができます。単純には混成の増加により、近藤温度が増大し、有効質量が減少

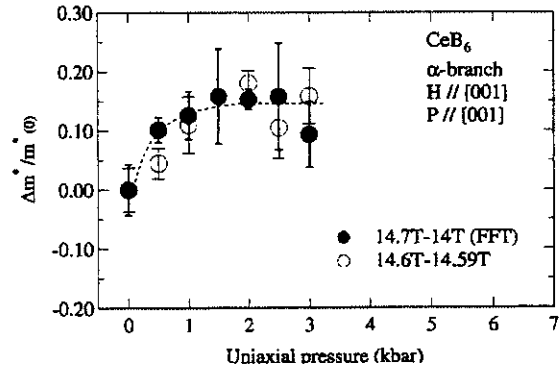


図5. 有効質量の軸性圧力に対する相対的变化

たと解釈できます。したがって、軸性圧力の場合は逆に混成が減少したと解釈できます。

このように、軸性圧力は静水圧とは異なった圧力による電子状態の制御を行うことができます。実際 CeB_6 、 $\text{Ce}_3\text{Pd}_{20}\text{Ge}_6$ の磁気相図は軸性圧力によって大きく変化し、また、静水圧とは定性的に逆の変化をします。しかし、当初軸性圧力は、軌道秩序に対して大きな影響を与えると予想していたのですが、実際上記の物質で軸性圧力を加えて軌道秩序の転移温度を調べてみると 3 kbar までの圧力範囲では実験誤差以上の変化はありませんでした。軌道間の相互作用は局在磁気モーメントの RKKY 相互作用のように伝導電子を媒介したものであるという考え方があります。有効質量の変化からすると伝導電子と局在 f 電子の混成はかなり変化を受けているように見えますが、なぜ軌道秩序にほとんど影響を与えないか不明で、今後の課題です。

謝辞

紹介した静水圧下の $dHvA$ 効果の開発については物質・材料研究機構の松本武彦さん、寺嶋太一さん、筑波大学院生高下雅弘さん（現東芝）との共同研究です。また、軸性圧力については極低温科学センターの木村憲彰さん、大学院生山水卓さん（現日立メディコ）との共同研究です。