CeB_6の比熱および磁気熱量効果

東北大理・筑波大物質工*　　藤田敏三　鈴木真
小松原武美*　国井暁　糟谷忠雄　大塚泰一郎

CeB_6の熱的性質として，比熱および磁気熱量効果のふるまいを紹介し，この物質を理解する際の手がかりの1つにしたい．

§1．比熱の異常[1)]　　ゼロ磁場でCeB_6の比熱を測定すると，2.2Kにするどいピークがあり，2.9Kにも小さいが明瞭なコブBがみられる．この比熱の異常について，すでにLeeとBellの報告[2)]があり，Aは反強磁性転移に伴うもの，Bは不純物によるものと解釈されていた．しかし，磁場依存性を調べてみると，ABともにCeB_6固有のものであることが解る．図1は，磁場中で測定した比熱のデータの一例である．次にその特徴をまとめてみる．① 磁場を強くすると，異常Aは小さくなり低温側にずれる．② 異常Bは，磁場とともに成長して，高温側にずれる．③ Aに伴なうエントロピーの変化分は，ほぼそのままBに移る．④ 磁場の方向をかえると，Aに異方性がみられる．⑤ 磁場をかけて一層明らかになったことであるが，Bの高温側エッジは急で，ほとんど尾をひかない．⑥ 異常ABの位置をH-T面にプロットすると磁気相図が描かけ，高温側からⅠ,Ⅱ,Ⅲの3つの相に分けられる．⑦ しかし，単にピークの位置をプロットするより，むしろ，超伝導転移点を決定するときのように，2つの異常の高温側エッジをプロットした方が他の実験データ[3,4)]との一致がよい．⑧ ゼロ磁場の比熱からエントロピーを求めると，Ⅱ-Ⅲの境界の2.3Kですでに$S/R=\ln 2$，30Kで$S/R=\ln 4$になる．磁気測定の結果[3)]と併せて考えると，4重項Γ_8が拡がって，その底が基底状態の2重項Γ_7の近くまで下っていると予想される．

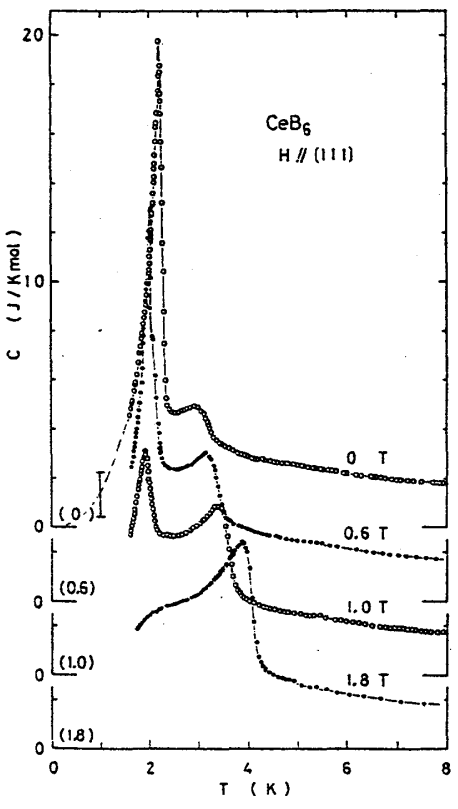

図1．比熱の異常に対する磁場の影響．H//⟨111⟩の場合

§2. 磁気熱量効果

磁気熱量効果の実験は，試料に断熱的に磁場をかけて温度の変化を測定する．熱力学的には，$(\partial T/\partial H)_S = -(\partial S/\partial H)_T/(\partial S/\partial T)_H = -\mu_0 T(\partial M/\partial T)_H/C_H$ に関する情報を与える．測定結果の例を図2,3に示す．CeB_6 の phase I では，常磁性状態から予想されるように，温度の変化はほぼ H^2 に比例している．phase II は，何らかの秩序をもった相と考えられるが，$H=0$ 近傍で $(\partial T/\partial H)_S=0$ のため，少くとも強磁性的自発磁化はないと考えてよい．H が大きくなると，$(\partial T/\partial H)_S$ は H にも T にもほとんど依存しない一定値に近づくようにみえる．しかし，これを単純な強磁性的秩序の誘起とみなすべきではなく，他の実験事実と併せて解釈する必要がある．たとえば，NMR のデータは，反強磁性を示唆している．phase III では，磁場をかけると温度が下る．また異方性がみられ，<100> の磁場に対して，負の磁気熱量効果が最も小さい．これは (100) 面内の反強磁性的磁気モーメントの配列を予想する中性子回折の実験結果[6]に対応するものといえる．低温では，比熱にはみられなかった微細構造が観測された（図3）．1つの可能性として磁区構造との関連が考えられるが，詳しいことは今のところ明らかではない．

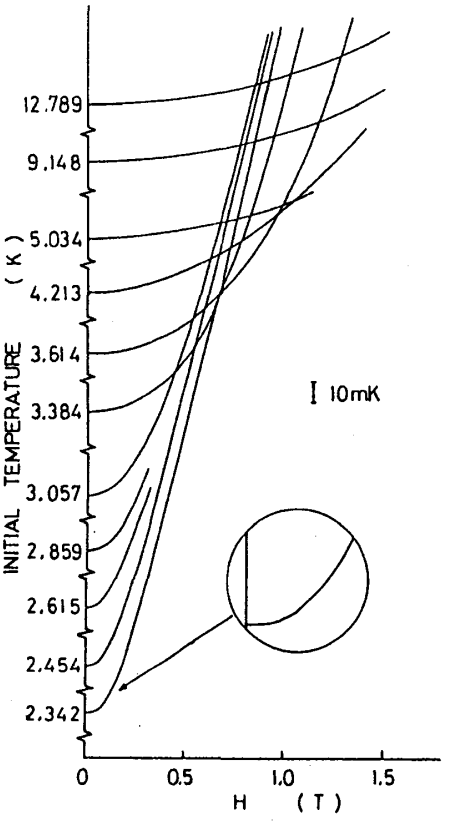

図2. Phase I および II における等方的な磁気熱量効果

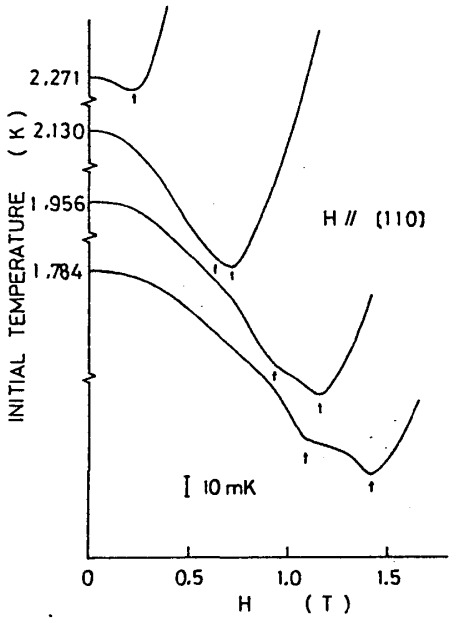

図3. Phase III における負の磁気熱量効果．H//<110> の場合

1) T.Fujita et al., Solid State Commun. 35,569 (1980). 2) K.N.Lee & B.Bell, Phys. Rev. B6,1032 (1972). 3) M.Kawakami et al., Solid State Commun. 36,435(1980). 4) A.Takase et al.,Solid State Commun. 36,461(1980). 5) M.Kawakami et al., J. Phys. Soc. Japan 50,432(1981). 6) J. Rossat-Mignod et al., Solid State Commun. 39, 471(1981).