

グラファイトにおける比熱の2重ピーク構造の発見

物性研究所・附属国際超強磁場科学研究施設・小濱 芳允、Zhuo Yang (杨 卓)

黄身が2つある卵は二黄卵と呼ばれる。幸運の兆しだと捉える文化もあるらしく、1つと思っていたことが2つあると人は嬉しいということだろう。本稿では、1つだと思っていたグラファイトの量子振動のピークが、比熱のみ2つに分裂する現象について紹介する(図1c)[1]。この比熱の2重ピーク構造はCEA-GrenobleのChristophe Marcenat博士と著者らにより、2019年頃に始まったグラファイトの共同研究で観測された新現象である(Christophe博士は2024年3月から外国人客員所員として小濱研に滞在)[2]。ピークが1つから2つに増えたものの、我々は科学者であるので単純に喜べなかった。サンプルが双晶になっているのか、測定セットアップの問題か、それとも本質的な現象なのかをさんざん議論したが、比熱の専門家であるChristophe Marcenat博士そして著者も、当時は2つに分裂する比熱ピークの起源を理解できずにいた。そんな折にChristophe Marcenat博士と小濱研の特任研究員であるZhuo Yang博士(現宮田研特任助教)らと共にf電

子系化合物の比熱測定を行ったところ、類似の2重ピークを発見し、同様にf電子系化合物であるCeRu₂Si₂における2重ピーク構造の解釈[3]を思い出した。この青木らによるCeRu₂Si₂論文では、電子状態密度に鋭いピークを1つ有し、これがゼーマンエネルギーによりフェルミエネルギーを横切ると比熱の2重ピーク構造を示すことが論じられている。グラファイトの自由電子も磁場下では量子化されたサイクロトロン運動を示すため、電子状態密度はランダウ準位による複数の鋭いピーク構造を有する。このため磁場下のグラファイトの状態密度はCeRu₂Si₂と類似性があり、サイクロトロンエネルギーでそれぞれのランダウ準位がフェルミエネルギーを横切れば比熱の2重ピーク構造が連続的に現れうる。この解釈で定量的に比熱の2重ピーク構造を再現できたためChristophe Marcenat博士と著者の長きにわたった疑問が解決したわけだが、本稿ではこの詳細について紹介する。

比熱は物性研究に古くから使われる物性量であるが、特に数K以下の低温領域では金属の遍歴電子に関わる電子比熱(C_{el})が支配的となる。電子比熱を温度で割った量(C_{el}/T)は電子状態密度の定量評価に使われており[4]、以下のように表現される。

$$\frac{C_{el}}{T} = k_B^2 \int_{-\infty}^{\infty} D(E) \left(-x^2 \frac{dF(x)}{dx} \right) dx \quad \text{式1}$$

ここで、 $F(x) = 1/(1 + e^x)$ はフェルミディラック分布関数、 T は温度、 k_B はボルツマン定数、そして $x = E/k_B T$ とおく。式1の近似式として、電子状態密度 $D(E)$ がエネルギー変化しないと仮定すると、非常に良く知られた以下の式が得られる。

$$\frac{C_{el}}{T} = \gamma = \frac{1}{3} \pi k_B^2 D(E_F) \quad \text{式2}$$

ここで、 $D(E_F)$ はフェルミエネルギーにおける電子状態密度を表す定数である。 γ はゾンマーフェルト係数と呼ばれ、式2によるとこの値は状態密度に比例するはずである。こ

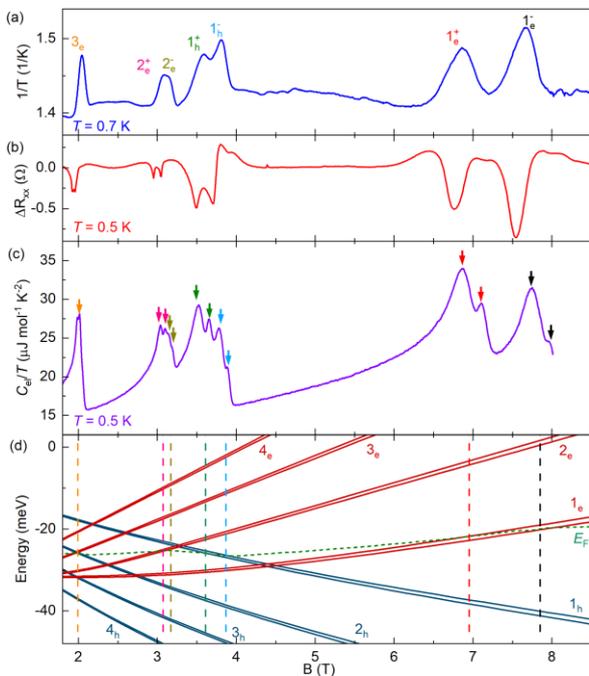


図1: 物性量とランダウ準位の磁場変化。(a)磁気熱量効果(1/T)、(b)電気抵抗の変化量(ΔR_{xx})、(c)電子比熱/温度(C_{el}/T)、(d)電子のランダウサブバンド(赤線)、ホールのランダウサブバンド(青線)の磁場変化を示す。

微細構造が不明瞭ではない場合も比熱の 2 重ピーク構造は観測されない。しかしながら比熱の 2 重ピーク構造およびその起源となるシャープな電子状態密度は、近藤格子系で一般に存在しうるようで、我々も UCoGe 等で 2 重ピーク構造を観測している[1]。このため図 2(a)のようにシャープな電子状態密度を保持する場合に、どのような C_{el}/T が現れるかを考えるのは興味深い。例えば E_0 がフェルミエネルギーに厳密に等しい場合(この状況は 2 重ピーク構造の中心における磁場で成り立つ)、 C_{el}/T の温度変化は非フェルミ液体の系で見られるような対数発散を示すことが判っている[1]。このような複雑な比熱の振る舞いが、状態密度に特徴的な形状を仮定するだけで出現するのは驚きであった。低温比熱の複雑な振る舞いを説明した論文として、本研究は磁場で誘起されるフェルミオンの諸現象(量子振動、量子臨界現象やリフシツツ転移)のより精密な理解に貢献していくと考えられる。

参考文献

- [1] Z. Yang, B. Fauqué, T. Nomura, T. Shitaokoshi, S. Kim, D. Chowdhury, Z. Pribulová, J. Kačmarčík, A. Pourret, G. Knebel, D. Aoki, T. Klein, D. K. Maude, C. Marcenat, and Y. Kohama, *Nat. Commun.* **14**, 7006 (2023). Editor's Highlighted.
- [2] C. Marcenat, T. Klein, D. LeBoeuf, A. Jaoui, G. Seyfarth, J. Kacmarcik, Y. Kohama, H. Aubin, K. Behnia and B. Fauque, *Phys. Rev. Lett.* **126**, 106801 (2021). Editors'Suggestion.
- [3] Y. Aoki, T. Matsuda, H. Sugawara, H. Sato, H. Ohkuni, R. Settai, E. Yamamoto, Y. Haga, A. Andreev, V. Sechovsky, L. Havela, H. Ikeda, and K. Miyake, *J. Magn. Magn. Mater.* **177**, 271 (1998).
- [4] C. Kittel & P. McEuen, *Introduction to Solid State Physics* Vol. 8 (Wiley, 1996).
- [5] K. Miyake and H. Ikeda, *J. Phys. Soc. Jpn.* **75**, 033704 (2006)
- [6] S. C. Riggs, O. Vafek, J. B. Kemper, J. B. Bett, A. Migliori, F. F. Balakirev, W. N. Hardy, R. Liang, D. A. Bonn and G. S. Boebinger, *Nat. Phys.* **7**, 332 (2011).
- [7] V. A. Bondarenko, S. Uji, T. Terashima, C. Terakura, S. Tanaka, S. Maki, J. Yamada, S. Nakatsuji, *Synth. Met.* **120**, 1039, (2001).

