

イッテルビウム化合物を用いた 1 K以下の極低温生成のための磁気冷凍材料の開発

志村 恭通 (広島大学大学院先進理工系科学研究科)

常盤 欣文 (日本原子力研究開発機構先端基礎研究センター)

絶対零度付近で起こる物性物理学の基礎研究の対象が、磁気冷凍という技術に応用され新たな展開を見せている。近年、絶対零度付近に大きな比熱、即ちエントロピーを持つイッテルビウム (Yb) 化合物が、磁場を使うことで、1 K以下まで冷却できる磁気冷凍材料として実用可能であることが分かってきた。

現在、0.1 Kを下回る極低温を生成する手段としては、希釈冷凍法が主流である。しかし希少なヘリウム3ガスに加え、ガスを循環させる複雑なシステムが必要であるため、手軽に冷やすことはできない。一方、磁気冷凍は、磁場を印加した磁性体材料を断熱環境下に置き、磁場を下げるだけで冷却できる。断熱環境下ではエントロピーが不変のため、磁場掃引において磁気モーメントの乱雑さを保とうとする分温度が低下する。

このように磁気冷凍は、シンプルな原理で冷やすことができるため、適切な磁性体が見つければ、極低温生成のハードルを下げるができる。しかし、現在までに実用化されている極低温用の磁気冷凍材料は、到達温度が比較的高い酸化物のガーネットや、0.1 K以下まで到達できるものの、不安定で扱いにくく、熱伝導率が低く熱を伝えにくい常磁性塩のみである。

希土類元素のひとつであるイッテルビウム (Yb) を含む化合物は、磁気秩序を示す場合でも、磁気モーメント間の相互作用が弱いため、磁気相転移温度が1 K以下である場合が多く、極低温用の磁気冷凍材料として有力である。さらに性能向上のために、磁気相転移温度を下げ、エントロピーをよ

り低温側まで保持する機構として、以下の二つの効果がある。一つは、Ybの結晶中での配置によりYb³⁺の磁気モーメント間の磁気相互作用が互いに競合し、一つの安定した磁気秩序構造を取りにくくする“**幾何学的フラストレーション**”効果である。もう一つは、Ybの持つ磁気モーメントと金属中の伝導電子の相関効果である。これにより伝導電子が大きな有効質量を持つ“**重い電子状態**”が形成される。

我々は上記の効果に着目し、比熱などの物性測定を通じて、高性能で使いやすい極低温用のYb系磁気冷凍材料を探索してきた。具体的には、幾何学的フラストレーション効果を利用した三角格子量子磁性体K₂Yb(BO₃)₂および、重い電子状態形成を利用した(Yb, Sc)Co₂Zn₂₀, YbCu₄Niである。前者は磁気冷凍による最低到達温度が0.02 Kと非常に低く、後者は金属であるため、1 K以下で問題となる熱伝導率の急減がない。我々はさらに、これらの大型試料を合成し、それを市販の冷凍機に搭載して、実際に磁気冷凍の試験を行い、十分に実用に耐えうることを実証した。

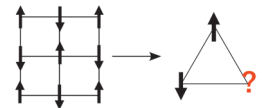
現在までにYbを含む化合物は数多く知られており、磁気冷凍の鍵となるエントロピー特性は様々であるが、冷却材としての報告はまだごく少数しかない。したがって今後、基礎物性研究と応用材料開発をつなぐ学際的研究として、大いに発展するかもしれない。さらに、極低温は物性研究だけでなく、宇宙物理学や量子情報分野にも必要とされており、本研究をきっかけとして、様々な科学者にとって極低温環境が身近になることを期待している。

用語解説

幾何学的フラストレーション:

磁性イオンの持つ磁気モーメント間には磁気相互作用が働き、低温で磁気秩序が発生する(左図)。磁気モーメントが三角格子やカゴメ格子といった特殊な格子に配置されたとき、すべての反強磁性相互作用を満足する磁気秩序状態を形成できない場合がある(右図)。そのような、磁気モーメントの幾何学的配置に起因する状態の不安定性を、幾何学的フラストレーションと呼ぶ。

磁性体が幾何学的フラストレーションを持っている場合、磁気相互作用の大きさから期待される磁気相転移温度より実際の相転移温度が低く抑えられ、磁気エントロピーが低温に残る。特に磁気相互作用があるにもかかわらず、絶対零度まで磁気秩序を示さずに、磁気モーメントが量子力学的に揺らいでいる状態を量子スピン液体と呼ぶ。



重い電子状態:

伝導電子の有効質量は電子比熱係数に比例し、そのエントロピーは温度×電子比熱係数となる。

銅などの通常金属の電子比熱係数は10 mJ/K² mol以下であることが多い。しかし、内殻に局在した電子と伝導電子の間の交換相互作用が働くと、伝導電子の有効質量が増大し、重い電子状態が形成される。特に希土類化合物の場合、電子比熱係数が最大10,000 mJ/K² mol程度の非常に大きな値を示すことがある。

