

三角スピニングにおける量子トンネルと断熱磁化過程 Adiabatic Magnetization and Quantum Tunneling in Spin Triangles

東北大・金研 野尻 浩之, 大島 勇吾
H. Nojiri and Y. Oshima

Institute for Materials Research, Tohoku University

1. はじめに

近年、磁性分野では、ナノスケールの磁性体の研究が盛んであるが、本質的に量子的な現象の実験は未開拓な部分が多い。これらの系では、量子系特有の離散的エネルギー準位が本質的な役割を果たすと考えられている。しかしながら、現実の系は少なからず周りの熱浴と結合しており、環境の擾乱によりしばしば、量子性を喪失している。このような状態にあるナノ磁性体を、いかに環境から切り離して量子的に操作するのか？これらは磁性分野に残された大きな課題である。

最初にこのような問題が研究されたのは、巨大スピン強磁性クラスターMn12acにおけるマクロな磁化の量子トンネルの発見である。その研究の焦点は強磁性クラスターの共鳴トンネル効果であったが、トンネルギャップの起源が異方性の高次項で数十 mK程度と小さく、環境によるデコヒーレンスを無視できない。今回我々は、この壁を破る方向として、トンネルギャップが相互作用の異方性で決まり、強磁性クラスターの数十倍大きい反強磁性三角リングクラスターの磁化過程を研究した。

2. 三角スピニングとスピカイラリティ

三角スピニングは基底状態がスピカイラリティの自由度を有する。スピカイラリティは、リングとして定義される量子自由度であり、スピンを1つずつ操作するのに対して遙かに扱いやすい。実際、このような発想にもとづき、我々はリングにおける高速磁場掃引下の量子準位を反映した断熱遷移を実現した。エネルギー準位を考えると、Fig.1のように、三角リングでは基底状態 $S=1/2$ が余分な縮退をもつ2組の二重項からなる、これらの2組がスピカイラリティに対応する。

ここで重要なことは、異なるスピカイラリティをもつ準位は、量子トンネルにおいてスピンの反転を支配する混成ギャップの対称性が異なっている点である。例えば相互作用が完全に等方的な場合、Fig.1に示すように、正三角形では、励起状態と基底状態は混成を生じない。一方、三角リングに構造的なカイラリティが有る場合は、リングに裏表が生じるために、交換相互作用の反対称的な部分が復活し、一方の準位のみトンネルギャップが生じる。さらに対称性が低下して、2等辺になった場合には、2つ

のスピカイラリティ状態の間に混成が生まれるために、トンネルギャップは2カ所で開く複雑な構造を示す。

今回我々は、このような三角スピニングの対称性が量子トンネルや断熱磁化過程に与える影響を実験的に研究した。ここで1つ注意すべき事は、これらのエネルギー準位の考察においては、電子スピンのみが考慮されており、Cu イオンが有する核スピンの影響は無視していることである。実験的には、定常磁場とパルス磁場を組み合わせ、スピンを強磁場下で初期編極した場合の影響を含めて研究を行った。測定温度は ^3He 領域であるので、核スピンの偏極に関しては制御出来ていないと考えられる。

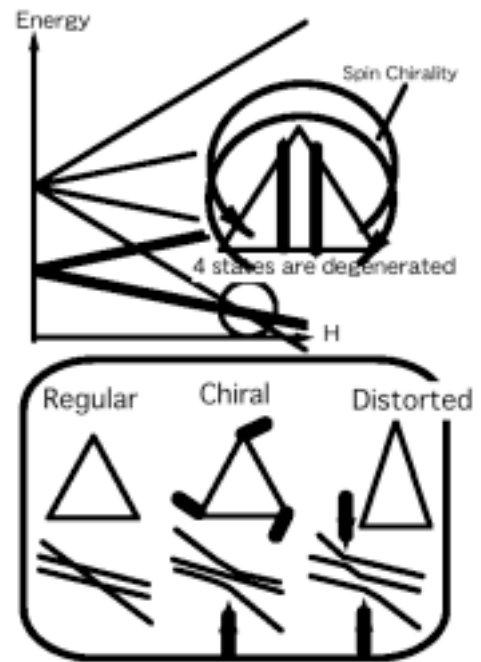


Fig. 1 Energy diagram and shape of tunneling gap in spin triangle

3. 三角リングの対称性と磁化過程

Fig.2 に $\{\text{Cu}_3\text{As}\}$ の磁化過程を示す。 $\{\text{Cu}_3\text{As}\}$ においては、Cu イオン間の距離はそれぞれ 4.696, 4.696, 4.689 Å とほぼ等しく、正三角形と見なせる。一方で類似物質の、 $\{\text{Cu}_3\text{Sb}\}$ は、三辺の距離がそれぞれ 4.871, 4.871, 4.772 と非等価であり、構造的には二等辺三角形である。対称性で言えば、前者は C_3

の対称性を有し、後者はそれが存在しない。対称性が低下した $\{\text{Cu}_3\text{Sb}\}$ の磁化過程は Fig. 2 に示す磁化過程との明瞭な差がある。一つめは、5 T 付近の準位交差による磁化のステップにおいて、正三角形の $\{\text{Cu}_3\text{As}\}$ は磁化がある範囲でプラトーを示すのに対して、二等辺三角形の $\{\text{Cu}_3\text{Sb}\}$ は磁化がゆっくりではあるが上昇する点である。二つめの違いは、磁場を一旦正の値にふった後で、負に掃引した場合に、正三角形では負の磁場側でヒステリシスがないのに対して二等辺三角形の場合は、ヒステリシスがある事である。この違いを記憶という観点から言えば、正三角形の場合は、磁化が一旦正の磁場で飽和したことを覚えているのに対して、二等辺三角形ではそのような記憶を失っているということである。

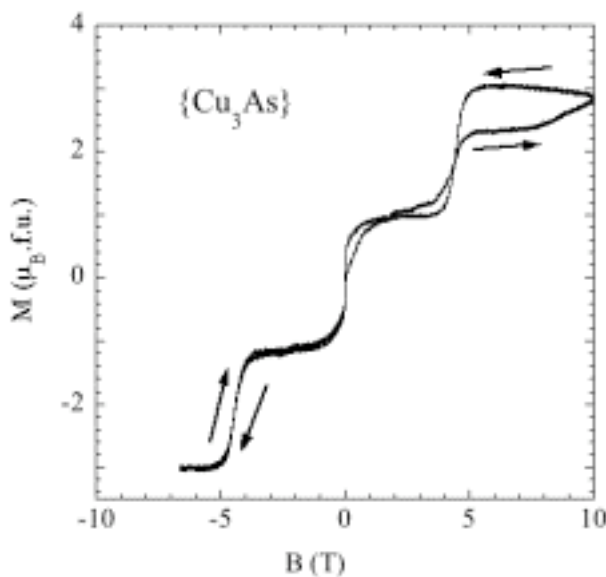


Fig. 2 Magnetization curve in a full cycle loop for $\{\text{Cu}_3\text{As}\}$.

この2つの磁化過程の違いと、Fig. 1 のようなトンネルギャップの形の違いとの関連に関して以下で考察する。Fig.1 に示すトンネルギャップの構造に従えば、低磁場で2つの縮退したエネルギー準位にあったスピンは、準位交差において、一方は反転し他方は反転しない。より正確には、二等辺三角形の場合は、トンネリングが2回起こることで、片方のスピンのカイラリティ状態が交差前の状態に復帰すると考えられる。従って、断熱的な磁化過程のみを考えれば、両者の磁化過程が異なる理由はない。

しかしながら、正三角形の場合は、先に述べたように、一旦磁化が飽和したという記憶が長く残る。この事を考慮すると、リングの対称性が低下すると異なる準位間の緩和時間が速くなることで緩和が促進され、偏極が短時間で失われると推測できる。

我々はこのような推測を実証するために三角リングの骨格部に配置されている Na の NMR 測定を行った。その結果、二等辺三角形のスピニング $\{\text{Cu}_3\text{Sb}\}$ では、励起状態との準位交差において緩和

率 $(1/T_1)$ が大きく増大することが見いだされた。

この結果は、磁化過程の違いが動的な緩和率の違いによることを明瞭に示す結果である。それでは、この違いの原因はどこにあるのであろうか？三角リング上のスピンのカイラリティは、正三角形の場合、エネルギー的には縮退しているが、互いの波動関数は独立直交している。しかしながら、リングの対称性が低下すると、この関係が崩れて互いに混成が生じる。この混成は、静的な対称性低下だけでなく動的で瞬時的な対称性の低下によっても起こる。

リング上の1辺を伸縮するような振動モードがあれば、この振動に従って瞬間的に対称性が低下し、スピンのカイラリティ間に混成が生じる。この瞬間的な混成により緩和あるいはスピン状態の遷移が起こり、結果として偏極が失われると考えられる。

このような振動とスピン状態の結合は、スピン-格子相互作用というより、寧ろ1つの分子内での振動モードとの結合であるのでバイブロニックモード的な現象と呼ぶべきである。NMR において観測された緩和時間の増大とリングの対称性の関係は、二等辺三角形では構造的な不安定性により誘導されるバイブロニックモードによる緩和として理解される。

最後になるが、定常磁場によりスピンを初期偏極した場合においても同様の現象が見られる。これより、今回の違いは断熱冷却現象などによるものではないことが判明した。緩和の原因となりうるもう一つの候補である核スピンに関しては、より超低温の測定により、偏極を制御したときの磁化過程を研究する必要がある、現在稀釈冷凍機域の磁化測定を準備中である。

4. まとめと今後の展望

本研究では、三角スピニングにおいて磁化過程とリングの対称性の関係を研究し、両者に密接な関連があることを見いだした。特に、対称性の低下と関連したバイブロニックモードの有無が、スピン状態間の緩和時間ならびに NMR のスピン-格子緩和時間の差に寄与することが明らかになった。

参考文献

- [1] K. Y. Choi *et al.* Phys. Rev. B **77**(2008)024406.