

# Cr<sup>5+</sup>反強磁性ダイマーの BE 凝縮-核スピン制御磁性体の探索 BE-condensation of Cr<sup>5+</sup> dimer-toward the nuclear spin control material

東北大・金研, 野尻 浩之, 大島 勇吾, 善本達矢  
Virginia 大・物理 S. H. Lee, 古府舞子  
H. Nojiri, Y. Oshima, T. Zenmoto, S. H. Lee<sup>1</sup> and M. Kofu<sup>2</sup>  
Institute for Materials Research, Tohoku University  
<sup>1</sup>Department of Physics, University of Virginia

## 1. はじめに

近年、磁性分野では、コヒーレントな量子現象に関心が集まっている。量子コヒーレンスの実現には、計測技術や量子操作のスキームなどとともに、コヒーレンスを実現しやすい物質の開発が重要である。とりわけ電子スピンにおけるコヒーレンスの実現は幾つかの理由で困難がある。具体的には、核スピンに対して緩和時間が短いこと、スピネコーなどの手法が容易でないこと、さらに巨視的な熱浴となる格子系や核スピン系との結合が無視できないことである。

通常、格子系とスピン系は結合が間接的なので、これに対しては、緩和時間より十分に短い時間で操作を行うことなどで一定の効果がある。一方、核スピン系は電子スピンと同様角運動量を有するので、各種の保存則を利用したスピン操作において、重大な支障となることが多い。そこで、核スピンレスな物質を開発することが重要な課題となる。ここで核スピンレスとは、少なくとも操作する磁性イオンと直接的に結合するオンサイトの核スピンを除去するあるいは減らすことを意味する。そのためには同位体を用いることが考えられるが、それ以前に、核スピンをもつ同位体が少ない磁性イオンからなる物質の開拓から進めるのが筋道である。そのようなイオンとしては Cr, Ni, Fe などが考えられるが、これだけではスピン量子数が限られてしまうので、これらのイオンの異なる価数状態の物質を発掘する必要がある。今回我々は、核スピンの少ない Cr の反強磁性ダイマー系を探索し、その磁性を研究したので報告する。

## 2. Ba<sub>3</sub>Cr<sub>2</sub>O<sub>8</sub> と K<sub>2</sub>NaCrO<sub>8</sub>

Cr イオンは通常 3 価でスピン 3/2 であるが、まれに 5 価の状態をとる。この Cr<sup>5+</sup> イオンは、スピン 1/2 の量子スピン系であり、量子効果を観測するのに都合がよい。今回我々は、2 つの Cr<sup>5+</sup> イオン物質 Ba<sub>3</sub>Cr<sub>2</sub>O<sub>8</sub> と K<sub>2</sub>NaCrO<sub>8</sub> を探索した。前者は、2 次元の層状構造を有する反強磁性ダイマー系であり、後者は 1 次元の反強磁性スピン鎖である。図 1 に Ba<sub>3</sub>Cr<sub>2</sub>O<sub>8</sub> の構造を示す。CrO<sub>4</sub> からなる四面体が 2 つ配列してダイマーを形成し、これらのダイマーが c

面内で Hexagonal に配置して 2 次元層を形成する。2 次元層は構造的に 3 倍周期で積層している。ダイマーを形成する 2 つの Cr イオンは距離が近く、強く相互作用しており、ダイマー間には弱い相互作用が働いたため、低温では磁場中磁気秩序-BE 凝縮が起こることが期待される。

一方、K<sub>2</sub>NaCrO<sub>8</sub> はギャップレスであり、磁化過程は 1 次元反強磁性鎖特有の非線形な磁場依存性を示す[1]。以下では、ダイマー系の物性に関して主に述べる。

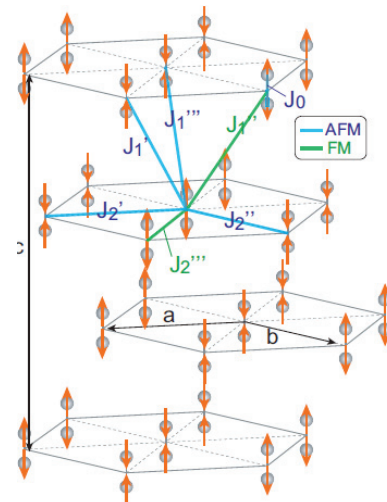


Fig. 1 Structure of layered antiferromagnetic dimer system Ba<sub>3</sub>Cr<sub>2</sub>O<sub>8</sub>.

## 3. Ba<sub>3</sub>Cr<sub>2</sub>O<sub>8</sub>における BE 凝縮

図 2 に 0.4 K で測定した磁化過程を示す。低磁場では、基底状態はダイマーの一重項であり、磁化が小さいが、12 T 付近の臨界磁場で励起状態のゼーマン分裂により基底状態が入れ替わり、磁化が立ち上がる。孤立ダイマーであれば、磁化はステップ状となるが、3 次元の相互作用があるために、磁化は直線上に増大する。臨界磁場付近での磁化の異方性を見ると c 軸に平行の場合の磁化が有限になっているのがわかる。その理由は、この磁場方向で基底状態と励起状態を混成するような相互作用が存在するためである。構造的にはダイマー間に反転中心がないために、反対称交換相互作用が生じることが予想され、ESR 測定などで、それを支持する結果が得られてい

る。飽和磁場の違いもこれにより説明出来る。

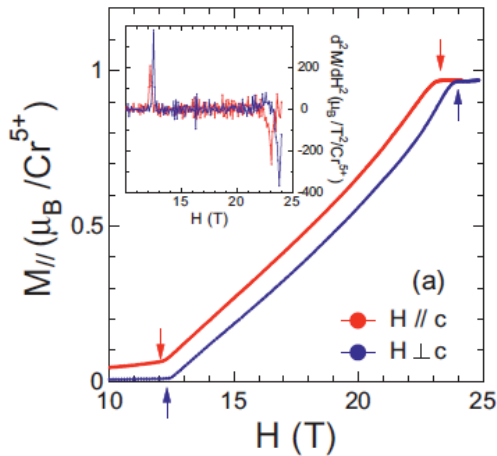


Fig. 2 Magnetization curve measured at 0.4 K.

図3には、超低温強磁場下における比熱測定の結果を示す。17 Tでは2.8 K付近に磁気秩序による比熱のピークが観測され、磁場を下げてこのピークは低磁場にシフトし、比熱の大きさが小さくなるのがわかる。磁化測定で見出された臨界磁場に近い12.5 T付近では比熱のピークは極めて小さくなるが、マイクロカロリメータの高感度により小さな磁気異常を明確に測定できている。また、通常超低温強磁場領域では核スピンの比熱が大きくなり、測定に影響を与えるが、今回の試料では、その効果は小さいことがわかり、この点でも核スピンレス物質としての特徴が確認できた。

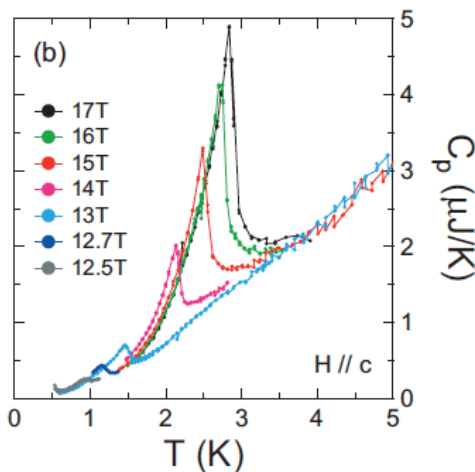


Fig. 3 Heat capacity by the BE-condensation of magnon

図4には、2つの磁場方向において比熱で決めたBE凝縮の磁気相図を示す。2つの方向での臨界磁場の違いを反映して、磁場方向にずれているが、形状は相似であり、2つの相線は、磁場方向にずらす

と重なるような振る舞いが見出された。この原因はCrイオンはスピン軌道相互作用が必ずしも大きくなくかつ less than half のために、g 値の異方性が小さいことがあげられる。実際にESRで求めたg値の異方性は0.5%以下となっておりCu<sup>2+</sup>などに比べて1桁小さい。このよい等方性は、量子効果を議論するには適している

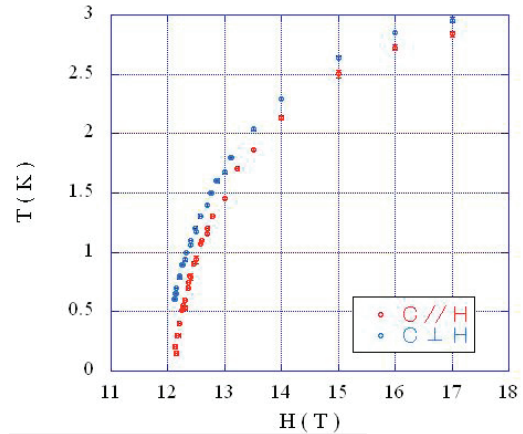


Fig. 4 Phase boundary and the anisotropy determined by the specific heat.

#### 4. 議論とまとめ

マグノンのBE凝縮では、臨界磁場と臨界温度のスケールリング  $T_c(H) \sim [H_0 - H_c(T)]^a$  から系の対称性を議論する。ここで  $T_c$  はある磁場  $H$  の元での臨界温度、 $H_0$  は絶対零度での臨界磁場、 $H_c(T)$  はある温度  $T$  の元での臨界磁場を表す。3次元の等方的なBE凝縮の場合は、 $a=2/3$  となることが期待され、今回の結果から1 K以下では比較的よい一致を示している。一方で、反対称交換相互作用があると等方性が破れてIsingのユニバーサリティになるという議論があり、この場合異方性が効く低温では  $a=1/2$  へのクロスオーバーが期待される[2]。この点に関しては稀釈冷凍機領域での測定を行うことが必要であり、今後の課題である。以上のように、本研究では核スピンを制御した量子スピン系物質の可能性を示すことが出来た。

謝辞：本研究で用いたマイクロカロリメータは大阪大学中澤グループとの共同研究によるものであり、ここに感謝する。

#### 参考文献

- [1] K. Y. Choi *et al.* Phys. Rev. B **78**(2008) 214419.
- [2] M. Kofu *et al.* Phys. Rev. Lett. (2009) in press