Osaka University Knowledge Archive

Title	励起状態のスピン秩序
Author(s)	天谷, 喜一; 柄木, 良友; 長谷田, 泰一郎
Citation	大阪大学低温センターだより. 1982, 37, p. 5-9
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/8879
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

Osaka University

励起状態のスピン秩序

基礎工学部 天谷喜一，柄木良友，長谷田泰一郎（豊中 4678）

強磁場発生技術という観点からは，高速磁場掃引は必然的である。コンデンサー放電方式による正弦波的単発パルス磁場を例にとれば $\frac{1}{4}$ 周期 $\cong$ 100 μ sec，最高磁場値 100Tとして $\frac{dH}{dt}$ の平均はオーダー的に 10^{10} G/sec にも達する。

この様に，パルス的な強磁場は常に，強磁場と高速磁場掃引という両面を持っている。ところで，従来，パルス強磁場下の物性研究に於いては“強磁場”の側面を生かした研究が大部分なのは当然としても，掃引の速さが本質的に意味をもつ例というのは殆んど見当らない。ここではその数少ない，しかし，まさにパルスならではの実験例を紹介する。

図1に示す様な初期分裂Δで特徴づけられる三準位スピン系の磁場中分裂をとりあげる。

具体的には，常磁性結晶中の一軸性異方性エネルギー下にある Ni^{2+} ($S=1$)の最低スピン準位である。さて，問題は，この系を低温にまで冷却した状態で，いきなり高速磁場掃引を行うと，系の状態はどう変化するかである。

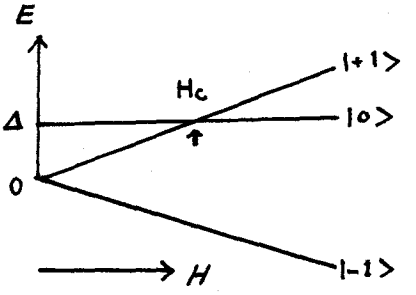

図 1.

低温，高速の条件とは式でかけば，

$$kT \ll \Delta \quad \cdots\cdots (1)$$

$$\tau_3 < \left(\frac{dH}{dt}\right)^{-1} \cdot \delta H < \tau_2 \quad \cdots\cdots (2)$$

である。ここに τ_2，τ_3 は上位二準位が交差する磁場値 H_c における夫々二準位系及び三準位系スピン緩和（が存在するとして）の時定数であり，δH は緩和の有効な磁場域である。$0<H<H_c$ においてこれらより速いスピン緩和はなく，スピン格子緩和も無視できるものとする。

直ちに，しかし不用意に，想像できるのは低磁場に於てほぼ $\frac{N}{2}$ コずつ $|\pm 1>$ の状態を占めていたスピンが，一切のスピン遷移を起す余裕もなく，population 不変のまま H_c に至り，その結果，$|0>$，$|+1>$ 二準位間には，ベラボーな population 比が生じる事となり，ヒョッとして夢の「超低温」が励起二準位系に於て，いとも簡単に達成されるではないかということである。この夢はしかし，直ちに破れる。理由は以下の通りである。

1. H_c におけるレベルの反撥

スピン緩和はスピン間の相互作用によって起り，緩和時間の短かさは相互作用の強さを意味する。相互作用 $\mathscr{H}_{int}$ の非対角要素の大きさは H_c におけるレベルの反撥の度合いを与える。従って夢の超低温は低次元系等特別な系をのぞき，

$$T_f \cong T_i \cdot |<1|\mathscr{H}_{int}|0>|/\Delta$$

にとどまる。

2. スピン秩序の発生

更に $kT \cong \Delta$ 程度の初期温度で達成される温度域では

$$kT_f \cong |\langle 1 | \mathscr{H}_{int} | 0 \rangle|$$

となるがこれは大雑把に言ってスピン秩序へ転移点のオーダーを与える。

従って「超低温」はともかく，励起状態のスピン冷却とそれに伴うスピン秩序の発生は工夫次第ではイケソーな話である。

という訳でこの数年，我々はその実現を目指してシツコク追求して来た。[1,2] その最新の成果を紹介する。

Sodium nickel triacetylacetonate benzene(以下NaNi $Acac_3$・⬡ と略す）という分析化学出身でも一度では覚えにくい物質がある。ところが，この結晶中の Ni^{2+} のスピン・ハミルトニアンは極めて単純に

$$\mathscr{H} = \Delta S_z^2 + g\beta H S_z \qquad (\Delta = 3.151\mathrm{K},\ g = 2.20) \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots (3)$$

で与えられる。[3] 交差磁場値は $H_c = \dfrac{\Delta}{g\beta} = 2.13\mathrm{T}$ であり，磁場中分裂は図1の通りである。

このスピン三準位系の常磁性緩和の実験[4]によれば，速い交差緩和が三準位の準位間間隔の等しくなる磁場値（$H = H_c/3$），及び H_c に於て存在する。緩和時間は温度にも依存するが，$\tau = 6\mu\mathrm{sec}$（$H = H_c/3$，$T = 1.65\mathrm{K}$）である。また，我々の実験によれば $\tau_3 \lesssim 1\mu\mathrm{sec}$（$H = H_c$，$T = 1.2\mathrm{K}$）と見積る事ができる。交差緩和の有効な磁場領域 δH はおよそ500G程度である。

従って $\dfrac{dH}{dt} \sim 10^{10}$ G/secの磁場掃引に際しては

$$\left(\frac{dH}{dt}\right)^{-1} \delta H = 5 \times 10^{-8}\ \mathrm{sec} \lesssim \tau_3 \lesssim 10^{-6}\ \mathrm{sec} < \tau_e = 6 \times 10^{-6}\ \mathrm{sec}$$

の条件を満し，少くとも H_c に至る迄の磁場掃引過程でpopulation 不変がほぼ満足されると評価できる。実験的には，結晶の安定性や，unit cell中の2種の Ni^{2+} 等価性も重要な因子ではあるが，緩和時間 τ_e の遅い物質探しが，高速パルス磁場の製作と共に第1の難関であり，その点NaNi $Acac_3$・⬡はやっと見付かった1例である。

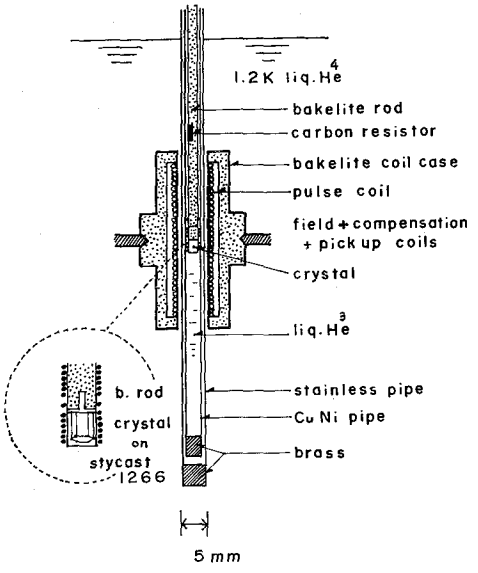

図 2. COIL SYSTEM & CRYOSTAT
Adjustable type

具体的に，我々の使用したコイルとクライオスタットを図2に示す。その特徴を列挙すると，

i) 試料及び検出コイルは ^3He に直接浸す事により4.2K以下0.5K迄冷却できる。

ii) パルスコイルは磁場軸（$\vec{H}$）と結晶軸（$\vec{z}$）とのなす角度を0.5°以内まで調整できる様にギアメカ付としている。これにより結晶場とのmis-alignmentからくる H_c でのanticrossing $\sqrt{2}D\theta$ を相互用程度の大きさ（$g\beta\,\delta H$）まで押える事が可能となっている。

iii) パルスコイルの性能は，$\frac{1}{4}$ 周期25μsec，

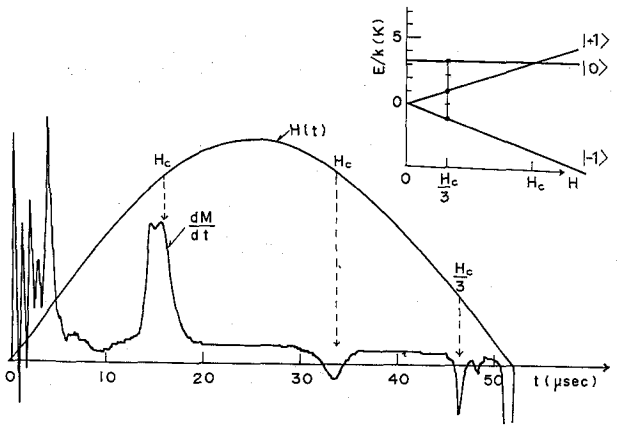

図 3.

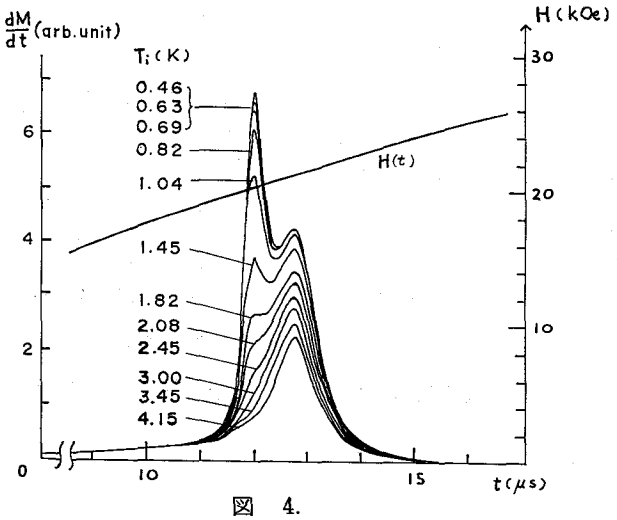

図 4.

最高磁界5T程度なので2×10^9G／sec の掃引速度の可変は放電コンデンサーの容量（30μF～3.000μF）や，印加電圧（1kV 以下）を適当に変えればよい。

等々である。

以上によって励起状態のエネルギー準位交差磁場近傍におけるスピン秩序の生成の道具立ては整った。実は，これに先立ち，我々は零磁場近傍基底状態|±1>のスピン秩序に関する実験を行なったのである。即ち，$T>20$mKにおける帯磁率，比熱の温度変化，及び磁化の磁場依存性等から常磁性→フェリ磁性の転移が$T_c=32$mK で起っていてフェリ状態の臨界磁場値は$H_c=320$Gと決定され，夫々三角格子Ising反強磁性の特徴を示すものと考え解析が試みられた。[5,6]

この事はしかし，必ずしも励起状態のスピン秩序が（存在するとして），フェリ磁性を示すと主張する根拠にはならないが，秩序転移のおよそのオーダーと，三角格子の反強磁性的性格は失われないと推定できる根拠は与えている。

とは言え，基底状態における様なIsing性は期待できないこと，磁気的希釈状態（H_cまでpopulationが上ってくるのはランダムに50%のイオンである。）にあること，磁場中スピン秩序を持徴づける相互作用の異方性がつかめないこと，そして最後に三角格子特有のフラストレーションが予想されること等々と，単純にはいかない因子が多い事も事実である。

以上の複雑因子を無視して実験的に予想出来るレスポンスは，$\frac{dM}{dt}$信号でみる限り，$Cu(NO_3)_2\cdot2.5H_2O$[7]や$Ni(NO_3)_2\cdot6H_2O$[8]で既にみた様に，$H\cong H_c$にdipをもち，H_cをはさんで相互作用程度離れた上，下の磁場値に夫々するどいピークを示すであろう。

実験結果を図3に示す。[9] 図3はパルス磁場$H(t)$の全掃引過程における$\frac{dM}{dt}$信号を示す。明らかに$H(t)$のincreasing mode($\frac{dH}{dt}>0$)において，$H\sim H_c$に予想どおり(?)のdouble peakが観測されている。図4はその拡大図である。初期温度T_iを下げていくと，次第に相境界の下部臨界磁場値（H_cの下0.1T）でのピークが鋭くなってくる。一方，T_iの高温領域（常磁性域でみられている）での$H\cong H_c$におけるpeakはT_iを下げてもその位置を変えずに残っていて，その高さも殆んどT_iに

依存しない。

以上の結果について，現在図5で示す様な解釈を与えている。即ち，観測された信号(i)は実は(ii)で示す様な全phase boundary（を仮定）の半分を通過する過程に対応して見出されたもので，従って，単純な反強磁性的秩序の全域を通過すれば，(iii)で示す様な対称的にH_{c_1}，H_{c_2}で夫々するどいpeak をもつ信号が観測される筈である。相境界の中央でdisorderに戻るheat leak については，実験で与えた掃引速度がH_c での三準位系交差緩和のrate(τ_3)と尚comparableであるためと考える。H_c における上位二準位のみの熱平衡を記述する時定数τ_2については，想像の域を出ないが，$\tau_2 \simeq 10^{-9}$ sec 位ではないだろうか。この値はスピン秩序形成（二準位系の）の時定数に一致しているのかどうか？筆者もまだ知らない。現在，0.1ϕ の銅線を直接検出コイルの上に巻きつけたminiatureコイルを直接，液体^{3}Heだめに浸し，パルス磁場を発生させることにより，10^{10}G/sec を超える掃引速度を達成しつつあり，以上の推測の信疑の程については追って紹介できると思っている。

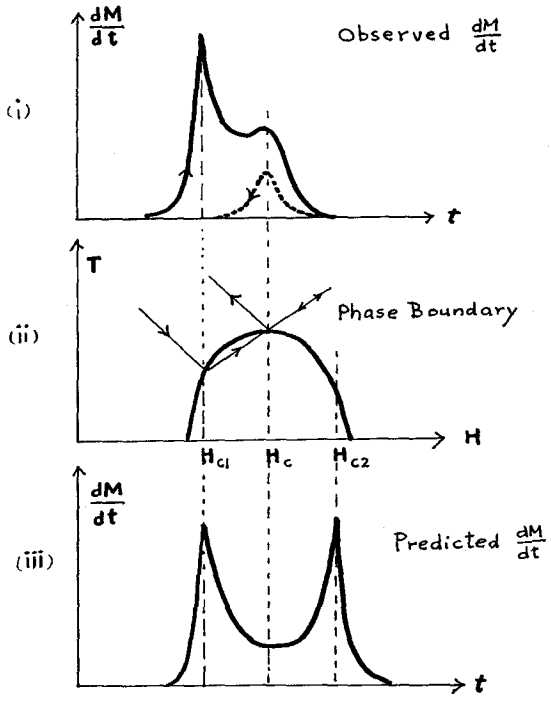

図 5. Interpretation of $\frac{dM}{dt}$ signal around $H \sim H_c$

参 考 文 献

1. 長谷田 泰一郎，天 谷 喜 一，山 下 直 彦，和 田 信 雄
昭和50年度文部省科学研究費総合研究(B)研究報告「強磁場下の物性」(1976年1月) p58.

2. 天 谷 喜 一，和 田 信 雄，長谷田 泰一郎
昭和55年度文部省科学研究費総合研究(B)研究成果報告書「超電導，常電導ハイブリッドマグネットの検討」(昭和56年3月) p45.

3. M. Peter : Phys. Rev. **116** (1959) 1432.

4. J. Kötzler : Physica **60** (1972) 375.

5. K. Amaya, N. Yamada, Y. Karaki, N. Wada, and T. Haseda : Physica **108** B+C (1981) 839.

6. N. Yamada, Y. Karaki, N. Wada and K. Amaya :
J. Phys. Soc. Jpn **50** (1981) 3911.
7. K. Amaya and N. Yamashita :
J. Phys. Soc. Jpn. **42** (1977) 24.
8. N. Wada, K. Amaya and T. Haseda :
J. Phys. Soc. Jpn. **43** (1977) 341.
9. K. Amaya, Y. Karaki, N. Yamada, and T. Haseda :
J. Phys. Soc. Jpn **50** (1981) 3181.