

電子スピン系の負温度状態

阪大基礎工 柄木良友, 天谷基一

1. 序

断熱消磁は常磁性体を冷却する有力な手段であり、エントロピーが十分低ければ磁気秩序も観測することが出来る。しかし磁場掃引は準静的に行わなければならない。高速に磁場を変化させた場合は熱平衡ではなく、過程は相図における等エントロピー曲線上では示すことが出来ない。この実験は高速掃引磁場を積極的に利用し、定常法では得られない現象を報告する。

2. 負磁化の生成

試料 Cs_3CoCl_5 は典型的な三次元 Ising 反強磁性体であり single ion のスピンハミルトニアンは

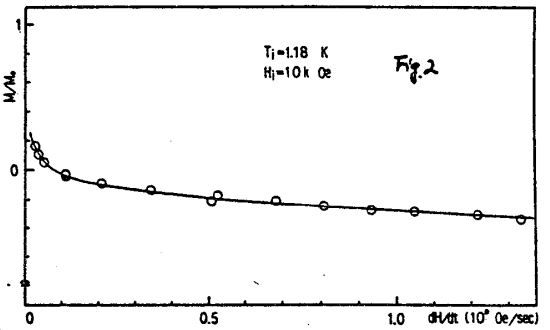
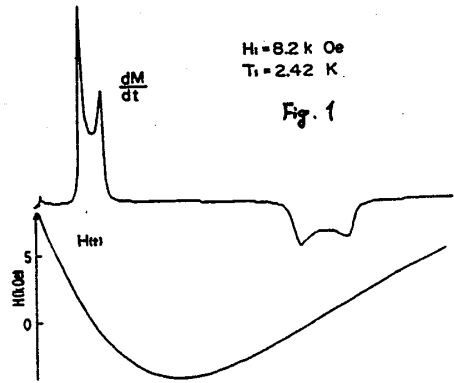
$$H = -DS_z^2 + g_0 \mu_B S_z H \quad (S = \frac{1}{2}) \quad \dots (1)$$

で与えられ $D = 6.2\text{K}$, $g_0 = 2.41$, $g_1 = 2.33$ である。¹⁾ 低温 ($T \ll 2D$) では $S_z = \frac{1}{2}$, $g_0 = 7.2$, $g_1 = 0$ で表すことが出来る。非常に異方的なスピン系である。相転移は *Huiskamp*²⁾ によって調べられており $T_N = 0.527\text{K}$, $H_C = 1900\text{Oe}$ の反強磁性である。強い異方性のため T-H 相図は単純な常磁性-反強磁性相境界をもつ。実験装置は超伝導ソレノイド中に一層巻きの小型パルスコイルを配置し定常磁場とそれに對し逆向きのパルス磁場の合成により

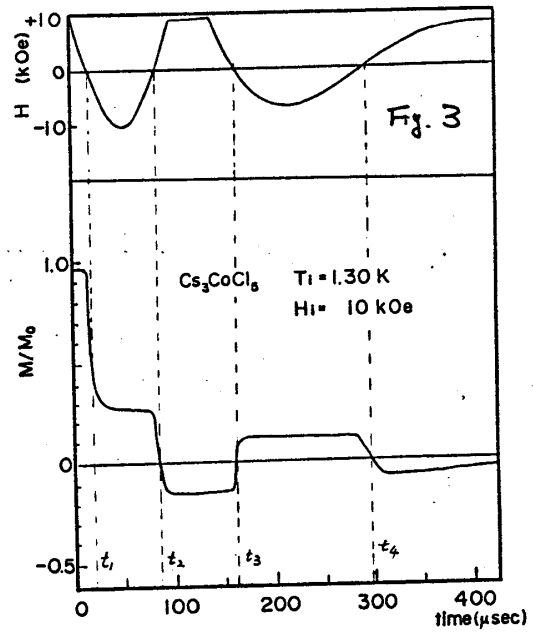
高速の消磁及び磁場反転を行う。試料は液体ヘリウムに直接漬けてありパルス磁場の継続時間がスピン-格子緩和時間 ($\sim 0.1\text{sec}$) に比べて十分に短いので磁場掃引中はスピン系は格子系から熱的に孤立していると考えることが出来る。図1に $\frac{dM}{dt}$, H の時間変化を示す。

$\frac{dM}{dt}$ の鋭い peak が零磁場を挟んで見られるがこれは常磁性-反強磁性相転移を示す磁化のどびを表わしている。この peak は磁場の掃引速度を大きくかつ初期温度を下げると崩れ出し、その時の $\frac{dM}{dt}$ より反強磁性秩序形成に必要な時間 T_{OR} を得た。(1985年3月研究会)

磁場中でそろったスピンに対し急激な消磁を行うと零磁場近傍では反強磁性秩序配列になるためスピンの反転が生じる。この反転に要する時間が T_{OR} であると考えられる。 $H_i = 1060\text{Oe}$, $T_i = 1.8\text{K}$ では $T_{OR} \approx 100\mu\text{sec}$ であり更に初期温度を下げると急激に T_{OR} は長くなる。したがって磁場の方向を急に反転した時磁化は磁場の変化に追従できず負の磁化が観測される。図2にこの様子を示す。図2で縦軸は磁場が反転し局所磁場よりも十分大きくなった時の磁化



の値、横軸は $H=0$ での dM/dt を示す。 $dH/dt \geq 0.08 \times 10^7 \text{ Oe/sec}$ の時磁化の方向は磁場反転前と同じでありスピン温度が定義出来るならば負になる。図3にパルス磁場を連続して2回加えた時の磁化を示す。右近傍では系の状態は t_1 や $T-H$ 相図上の等エントロピー曲線で表わすことは不可能となる。しかし $t_2 \sim t_4$ では負温度での等エントロピー的磁化の変化を示している。この理由は $t_2 \sim t_4$ でのエントロピーは十分に大きいので磁化は磁場反転に対しほぼ follow すると考えられるからである。図4に負温度も含めた断熱消磁過程での dM/dt を示す。図中の温度、磁場は磁化より計算で求められ、 T が正の時は反強磁性秩序を示す dM/dt の peak が見られる。負温度でも近接 6 spin の相互作用³⁾ を考えれば反強磁性秩序が生じるはずであるが初期温度が高いため見つかっていない。

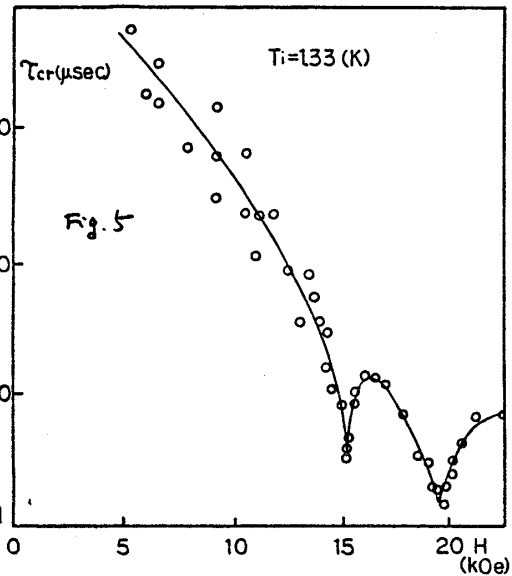
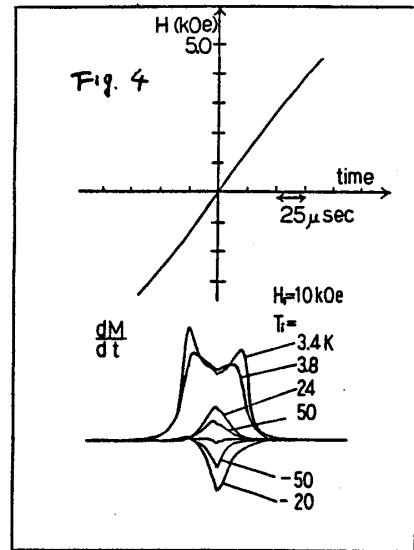


3. 磁化の緩和

前章で述べた様に高速に磁場反転を行うと初期磁化とは全く異なった磁化が生成される。パルス磁場が終ったあとは超伝導マグネットの作る定常磁場 H_1 の下で磁化が初期磁化の値に緩和するのが観測された。その際、磁化は2 step の過程で緩和した。第1段階は数 μsec ($H_1=15\text{kOe}$) の時定数で初期磁化とは異なる値に緩和し、第2段階で数 10 msec の時定数で初期磁化の値に緩和するのが見られた。図5に第1段階の緩和時間を示す。緩和時間は平衡値近傍の磁化の decay curve を

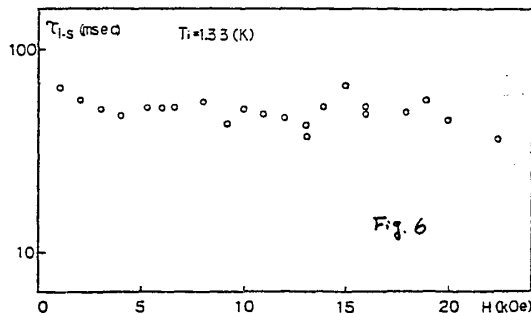
$$dM/dt = -(M - M_0) / \tau \quad \text{--- (2)}$$

に fit させて求めた。図5に示す様に 15.2 kOe, 19.4 kOe で極小値をとる。この磁場値では $g\mu_B$ で表わされる4準位系のエネルギーレベルの間隔が簡単な整数比になっている。したがってこの磁場値ではすなわち $population$ の移動(格子系が関与しない)が可能となる。この様なスピン緩和は交差緩和と呼ばれる。第2段階の緩和時間も図6に示す。Huiskamp²⁾ によるとスピン-格子緩和は Raman 過程が支配的であるとしており図6に示す様に緩和時間も磁場におよび依存していることは定性的に Raman 過程を支持していると思われる。

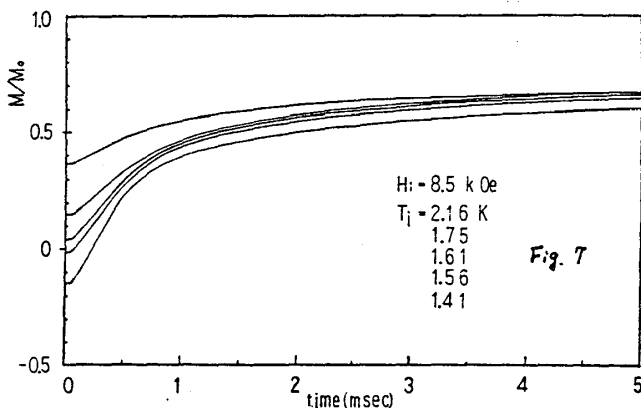


極低温での磁気緩和

通常のスピン-格子緩和は格子系の温度が一定という仮定で議論されている。しかし極低温下では格子比熱は非常に小さくなり格子系が恒温浴であるとはみなせることが出まらな。この様な効果が顕著に現れる例にフォノン"なだれ"現象がある。この現象は *adiabatic fast passage* によって反転磁化を作りその磁化の緩和が①直接過程により磁化かわすかに緩和する。



②①によって放出される $\hbar\omega$ のフォノンによって緩和が促進され見かけ上緩和時間が非常に短くなる ($\sim \mu\text{sec}$)。③負磁化が減少し、又フォノンも少なくなり再び逆り緩和にもどる。以上の過程が"なだれ"現象である。この現象も直接観測した例として Lanthan Magnesium Nitrate 中の Ce^{3+} の E.S.R. で磁化を抽出した実験がある。この場合 Ce^{3+} は非常に薄く ($\sim 0.2\%$) また緩和は直接過程が支配的であるため放出されるフォノンの $d\omega$ が小さい。



したがって"なだれ"現象が顕著に見られた。図7は Cs_3CoCl_5 の磁化の decay profile を示す。"なだれ"的な様子は見られな。その理由として Cs_3CoCl_5 の場合の磁気イオンは薄められておらず相互作用は 1000 Oe 程度である。(ii) 4 準位系のためフォノンに関係しない"交差"緩和が存在する。(iii) 0.7K 以上では Raman 過程が支配的である。以上より考えられる。しかし直接過程が支配的となる 0.1K 以下でしかも交差緩和時間の長くなる低磁場で負磁化の decay を観測すると"なだれ"的な現象が見れるのではないかと思われる。

参考文献

- 1) R.P. van Staple, H.G. Beljers, P.F. Bongers and H. Zijlstra: J. Chem. Phys. 44 (1966) 3719
- 2) K.W. Mess, E. Lagendijk, D.A. Curtis and W. J. Huiskamp: Physica 34 (1967) 126
R.K. Wielinga, H. A. Blöte, J. A. Roest and W. J. Huiskamp: Physica 34 (1967) 223
- 3) W. J. Brya and P. E. Wagner: Phys. Rev. 157 (1968) 400