

強磁性クラスターにおける磁化とクラスターの中間結合模型

東大総合文化 浜元信州 大西直毅

クラスターの磁化を測定する実験として Stern-Gerlach Magnet による屈折の profile をみる実験がなされている。この実験は様々なクラスターについてなされており、例えば、Fe, Co, Ni については図1のような結果を示している。この結果で特徴的なことは原子の Stern-Gerlach Magnet による屈折と違い、一つの方向のみに屈折していることである。それに対し、Gd の場合には粒子数によって違った振る舞いを示す。特に $N=21$ の場合には全く屈折しない成分が残るという結果が出ている。また、平均の磁化の温度依存性についても図2のような実験結果がでており、Fe, Co, Gd 全て温度を高くすると磁化が減るという結果となっているが、一部 Fe の低温領域で温度を上げると磁化も上がるという anormalous な温度依存性が観測されている。

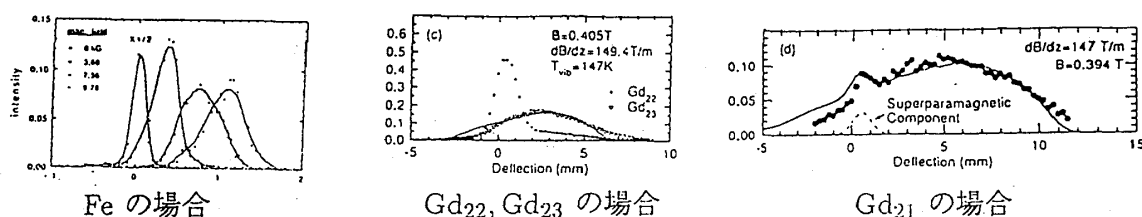


図 1: Deflection Profiles

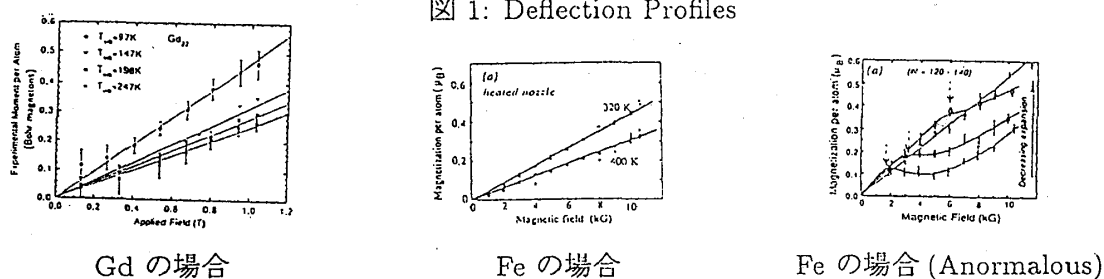


図 2: Temperature dependence

このような状況に対し、二つのモデルがでている。一つは "locked moment model" そしてもう一つは "superparamagnetism" である。まず、locked moment model であるが、このモデルはクラスターは小さいため単一の磁区からできているとし、単一の磁気モーメントを持つとする。そして、クラスターに対して磁気モーメントは動かない、という仮定をおいている。このモデルでの計算としては、Gd の実験をした Bloomfield 達が古典的に運動方程式をたて数値積分して profile をみたほか、Bertsch, Yabana らが量子力学的に扱い、profile や磁化を議論している。また、Bertsch, Onishi, Yabana はこのモデルを古典的に扱ってはいるものの、断熱不変量をうまく利用することにより、運動方程式を解析的に扱い、見通しの良い結果を得ている。

結果は $x = \frac{\mu_B}{k_B T}$ というパラメータのみに依存し、古典、量子の両方ともに一方向のみの屈折を示すほか、古典的な場合では Gd_{21} でみられた屈折を起こさない成分を再現している。また、磁化の温度依存性についても図のような結果と $x = 0$ 近傍での漸近形がわかっている。

次に superparamagnetism であるが、これは単一の磁気モーメントを持つのであるが、磁気モーメントはクラスターとほとんど結合しておらず、クラスターの運動を無視して自由に動けるものとする。ただし、わずかに結合は残っているものとする。この場合の平均の磁化は Langvin type

$$\mu_{\text{eff}} = \mu \left[\coth \left(\frac{N\mu H}{k_B T} \right) - \frac{k_B T}{N\mu H} \right]$$

になると思われる。Langvin type のような熱平衡の分布になる理由は、磁化とクラスターの弱い結合によってクラスターと磁化との間でのエネルギーのやりとりが生じ、磁化にのみ注目した場合には、あたかもクラスターが熱浴のような役割をするためであると考えられている。

この二つのモデルに対して今回我々は両者の中間的な場合、つまり磁化がクラスターに対してある特定の方向を好むというモデルを考え計算をおこなった。("Intermediate Coupling Model") この中間的な結合を実現するためには、電子系の全スピンの方向とクラスターの間に potential を考えるとよい。我々は今回は立方対称な potential

$$\begin{aligned} H_{\text{copl}} &= -u \left(S_1^4 + S_2^4 + S_3^4 - 6 \left(S_1^2 S_2^2 + S_2^2 S_3^2 + S_3^2 S_1^2 \right) + \frac{3}{5} \left(S_1^2 + S_2^2 + S_3^2 \right)^2 \right) \\ &= -u' \sqrt{\frac{32}{35}} \left\{ C_4^{(4)} + C_{-4}^{(4)} + \sqrt{\frac{14}{5}} C_0^{(4)} \right\} \end{aligned}$$

を考えて計算をすすめた。ほかに考えられるエネルギーとしては回転運動のエネルギー

$$H_{\text{rot}} = -\frac{1}{2J} R(R+1)$$

磁場との相互作用のエネルギー

$$H_M = -g_s S_z B$$

であり、全ハミルトニアンは結局

$$H = H_{\text{rot}} + H_{\text{copl}} + H_M$$

になる。さらにもう一つの仮定として、クラスターが磁場中に入るときには磁場の変化はゆっくりであるとし、磁場は断熱的に増加していくとする。この仮定のもとでは結合系の量子状態間の遷移はなく、おのこの状態の占有率 $\exp(-E/k_B T)$ は磁場が入っていないときの占有率で決まることになる。この結果、Stern-Gerlach Magnet を通したときの磁化の平均は

$$\langle S_z \rangle = \frac{\sum \langle S_z \rangle_i \exp \left(\frac{-E_i}{k_B T} \right)}{Z}$$

ただし、 E_i は磁場のないときのエネルギーで $\langle S_z \rangle_i$ は磁場のあるときのスピンの z 成分の平均である。最後に計算を簡単にするため、クラスターの慣性モーメントは等方的とする。

このようなモデルを用いて計算をすすめるのであるが、ハミルトニアン行列を対角化する際に角運動量が大いところでその次元が大きくなってしまう。しかし、角運動量の大い領域は、

回転エネルギーも大きくなるため占有率が少なくなるので、結果に大きな影響を与えないと考えられる。よってここでは、全角運動量の上限值 $I = 24$ 、クラスターのスピンの $S = 4$ として計算をした。

計算で得られた屈折のプロファイルを図3に示す。結合を強くした $u' = 20$ の場合と $u' = 30$ の場合の二つがあるが、locked-moment の時にみられたような $\langle S_z \rangle$ での対数発散は見られない。しかし、クラスターと磁化の結合を強くすると中央に集まる傾向が見られ、これを大きくしていけば locked-moment になり、そのときには発散が出てくるものだと考えられる。また、 x の大きな領域ではプロファイルは locked-moment とかなり似たものになる。

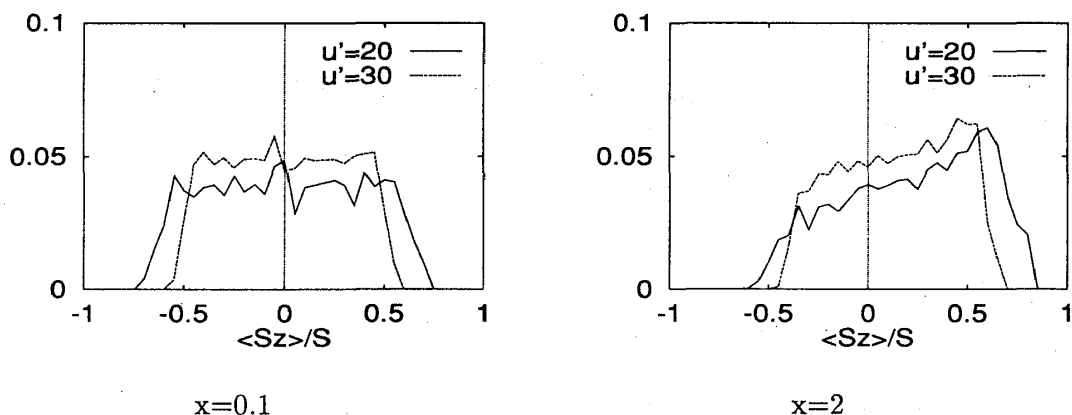


図 3: Intermediate Coupling Model における屈折の profile

次に温度依存性についてであるが、図4のようにさまざまな結合の大きさ u' について調べたがどの領域においても、温度を大きくすると磁化が下がるという具合になっており、実験でみられる Anomalous な温度依存性は再現できなかった。

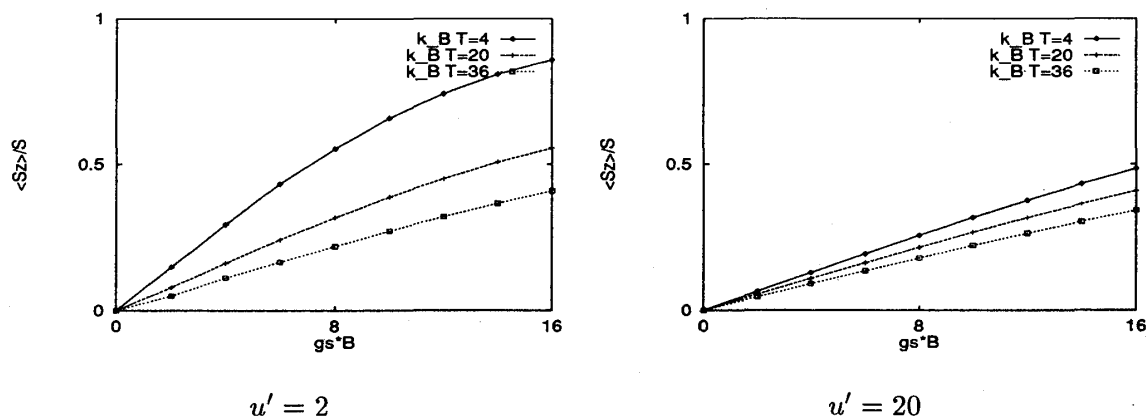


図 4: Intermediate Coupling Model における温度依存性

今度は弱い結合の場合であるが、このときには Superparamagnetic な振る舞いが期待される。プロファイルは図5のように $S = 4$ のときの磁気量子数に対応した九つの peak がみられ、磁場を増加に従い徐々に磁場の方向に向いて行く。一方、磁化の期待値を計算した結果は図5のよう

になり、Langevin や Brillouin の様にはならないということがわかる。従って、このモデルでは superparamagnetism は説明できない。

また、この図 5 では locked-moment や coupling の強い場合も示されているが、coupling が強い場合でも弱い場合でも、今のモデルは locked-moment よりも磁場への応答が鈍いことがわかる。これは、今のモデルでは potential として立方対称のものを採用しているため、対称性がよく、その結果、磁化が等方的になるような状態が多くなる。このような量子力学的なゆらぎがあるため、磁場に対して鈍感になったと考えられる。

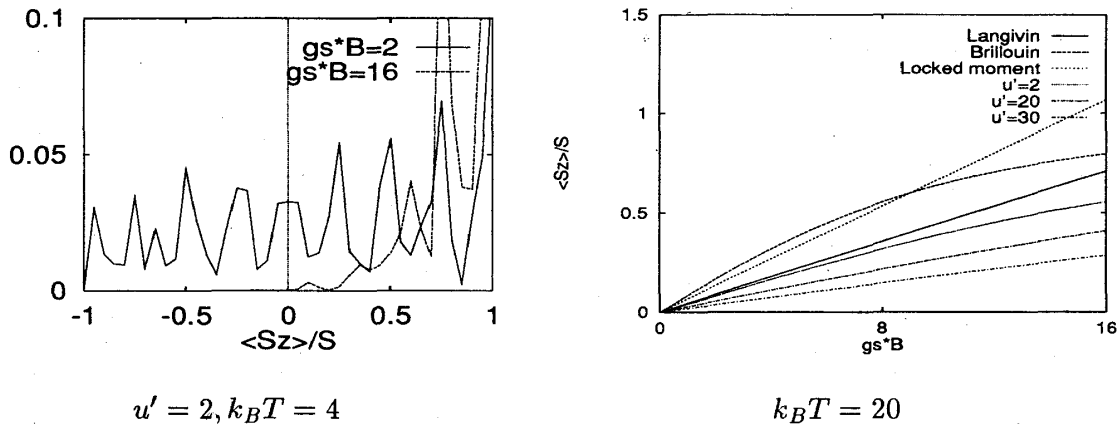


図 5: 弱結合での profile 及び 平均の磁化の磁場に対する応答

最後に locked-moment や superparamagnetism では磁化が $x = \frac{\mu_B}{k_B T}$ のみに依存するという scaling law があった。ここでは磁化とクラスターの結合という別のエネルギースケールを入れているので、当然この scaling law は破れているわけだが、強磁場、高温のときは結合のエネルギーはほとんど無視できるので Scaling law が成立すると期待される。実際に強磁場高温の所で磁化が x のみで決まることがわかり、この磁化を plot したのが図 6 で、ちょうど Brillouin と locked moment の中間的な振る舞いをするのがわかり、結合を強くすると locked moment に近づくことがわかった。

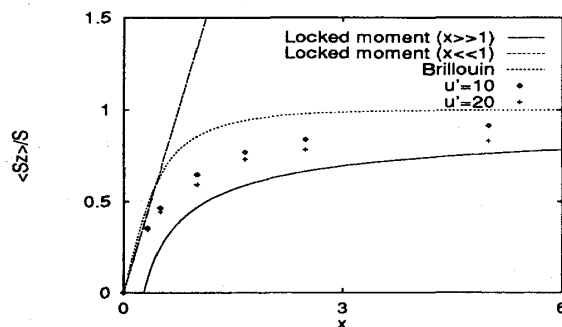


図 6: Scaling law の違い。この図だけは $I=20, S=4$ になっている