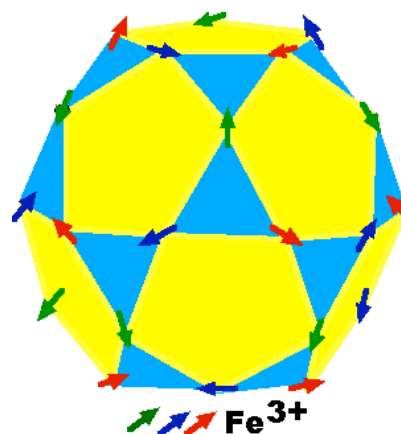


分子磁石におけるスピнкаイラリティと量子ダイナミクス

東北大学金属材料研究所・野尻浩之

錯体化学的な手法によって作られる分子磁石は、無機化合物にない多様な磁気ネットワークが可能な事から近年注目を集めている。これまでの磁性体の研究では、3次元結晶の中に埋め込まれた1次元鎖や梯子構造、あるいは2次元平面構造などといった低次元構造を見だし、そこで起こる様々な量子現象を探求してきた。一方、分子磁石においては、3次元の周期性にとらわれない磁性クラスターを出発点として、それを集積してバルク物質を得る。バルクであっても、クラスター間の磁気相関はゼロと見なすことが出来る、また結晶としての並進対称性を有しない磁気クラスターの集合体を得ることが出来る。

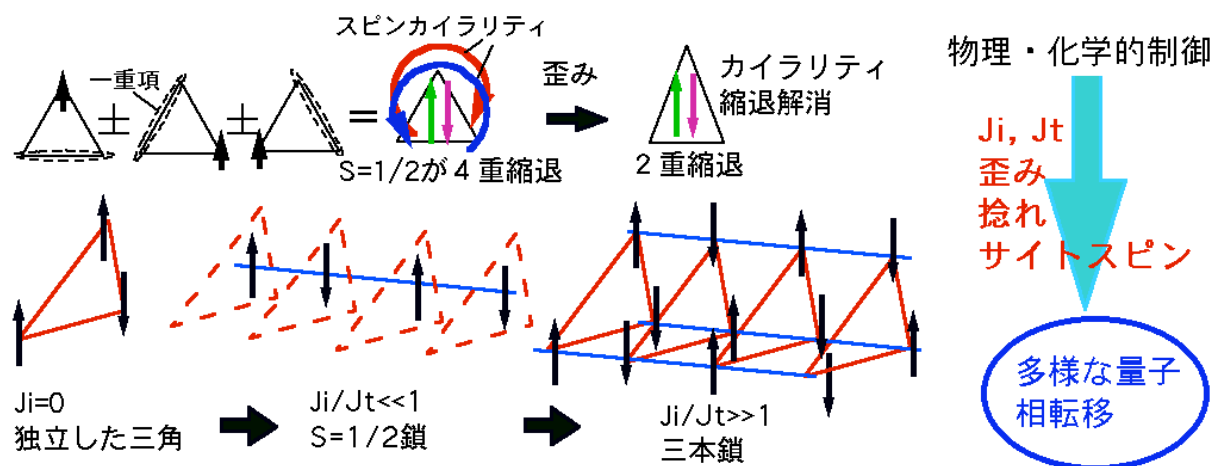
一例として、最近図のような20面体構造を有する多面体磁気クラスター $\text{Mo}_{72}\text{M}_{30}$ (M:磁気イオン)が幾つか合成されその磁性が注目されている。このような複雑な多面体クラスターを密に敷き詰めた3次元周期格子は存在せず、分子磁石系によってはじめて多面体磁気クラスターの研究が可能になる。このような多面体構造における磁気状態数は、個々のサイトのスピンのもつ自由度 S とサイトの数 N で S^N と与えられる。図のクラスターでは $N=30$ 、三価鉄イオンであれば $S=6$ 、四価バナジウムイオンであれば $S=2$ となり、それぞれ状態数は 10^{22} 、 10^9 となる。従って、クラスターの構造を同一に保ちながら状態数を13桁も変えることが出来る。実際、状態数の大きな変化にともなって基底状態が量子的な非磁性状態から古典的な120度構造に変化する事が見いだされている。従来研究されてきた次元性に加えて、多様な磁気ネットワークトポロジーと磁性の関連を研究することは、分子磁石において重要な課題となっている。



新しいトポロジーによる多様な磁性の発現には、内部自由度がしばしば重要な役割を果たす。その一つがスピнкаイラリティである。例えば、 $S=1/2$ のスピンの3つからなる三角リングにおいては、スピнкаイラリティは次図のように波動関数の位相因子に関係し、その結果、基底状態 $S=1/2$ 状態は波動関数の対称なものと反対称なものの余分な2重縮退を有する事になる。これはリング構造によって、系に新しい内部自由度が加わることに対応する。

このような内部自由度は系の基底状態を劇的に変える効果をもつ。例えば、三角リングを1次元状に結合して図のようにスピントラップとすると、内部自由度によ

り新しいタイプのスピンギャップが形成されることが予想される。よく知られているように $S=1/2$ の反強磁性 1 次元鎖は典型的なギャップレス系である。基底状態 $S=1/2$ の三角リングを 1 次元鎖に繋ぐとき、スピンの自由度だけを考えれば、 $S=1/2$ の反強磁性 1 次元鎖と等価であり、ギャップレスになると一見思われるが、この予想に反して系は内部自由度の存在のためにギャップをもつ。スピнкаイラリティは三角リングの歪みによって制御でき、そのような内部自由度の変化による量子相転移の研究は、軌道自由度の問題とも共通して興味深い。



スピнкаイラリティは、量子トンネルのような分子磁石のダイナミクスにも重要な役割を果たしている。量子トンネルにおける断熱的な磁化変化は、異なる状態間の波動関数の重ね合わせあるいは混成によって生じる。波動関数の混成は、対称性に強く依存するので、対称性の異なるふたつのスピнкаイラリティの状態において、トンネルギャップの形成の仕方は全く異なっている。この結果、三角リングにおいてはカイラリティによってスピンの量子トンネルの有無が異なる現象が見いだされている。

以上述べたように、分子磁石は新しいトポロジーをもった磁性体の宝庫であり、その一例としてスピнкаイラリティの自由度が量子相転移や量子トンネルに大きな役割を果たしていることが明らかになって来た。

参考文献

- [1] C. Schroder *et al.*, Competing Spin Phases in Geometrically Frustrated Magnetic Molecules, Phys. Rev. Lett. **94** (2005) 017205
- [2] J. Schnack, *et al.*, Magnetic characterization of the frustrated three-leg ladder compound $[(\text{CuCl}_2\text{tachH})_3\text{Cl}]\text{Cl}_2$, Phys. Rev. B **70** (2004) 174420.
- [3] K-Y. Choi *et al.*, Observation of a half step magnetization in the $\{\text{Cu}_3\}$ -type triangular spin ring, Phys. Rev. Lett. **96** (2006) 107202.