

磁気音響共鳴があぶり出す四極子・八極子自由度

[1] 要旨

電気四極子や磁気八極子などの磁性に由来する多極子の自由度は、通常は電子スピンの磁氣的性質に隠れていて、その直接的検出は難しい。最近、表面弾性波を利用した磁気音響共鳴による四極子自由度の観測の可能性が示された。本研究は、磁性原子の結晶場四重項状態に対して、四極子や八極子の特徴を捉える新たな超音波共鳴法を提案している。特に、 f 電子系で長年研究されている CeB_6 の多極子物性の解明に向けた本研究の提案は重要である。また、強磁場下での測定にも対応するために、超音波とマイクロ波を組み合わせる全く新しい共鳴法も提案している。

[2] 本文

固体内の電子スピンと超音波による格子歪みとの結合を活用した新たな量子制御技術の実現に向けて、特に表面弾性波 (SAW) を利用した磁気音響共鳴の研究が急速に進展している。世界的に注目されているのは、量子ビットの有力候補であるダイヤモンド内窒素—空孔複合体 (NV 中心) に現れるスピン三重項 ($S = 1$) や、炭化ケイ素 (SiC) 中のシリコン空孔 (V_{Si}) に生じるスピン四重項 ($S = 3/2$) といった、スピン欠陥の空孔電子状態である。これらは、スピンがもつ磁気双極子の他に、隠れた自由度として四極子を有し、これが格子歪み場と結合する。特に、結晶場の異方性が無視できるような V_{Si} の場合は、磁気音響共鳴の磁場方向依存性を測定することによって、四極子の特徴を捉えることが可能である。

一方、電気四極子や磁気八極子などの多極子が示す豊富な物性として、 f 電子系の磁性体である CeB_6 の四極子秩序が長年にわたって研究されている。特筆すべきは、Ce 原子の f^1 電子配置の立方晶 (O_h) 結晶場基底状態が四重項であることに起因して、その多極子自由度の絡み合いによって、多彩な磁場—温度相図を明解に説明できる点である。これまでの多くの研究でも多極子の役割の重要性が示唆されてきた。Ce 原子が有する四極子は局所的な格子歪みと結合するはずであるが、その直接的観測には至っていない。また、さらに隠れた自由度である八極子のような高次多極子の効果を、できるだけ簡便な手法で明らかにすることも多極子物性を深く理解する上で重要である。

最近、静岡大学の研究グループによって、立方晶 (O_h) における四極子および八極子の特徴を SAW によって直接検出する新たな手法が提案された。本研究は、 V_{Si} の場合に本研究グループが構築した、異方性のないスピン四重項に対する磁気音響共鳴の理論を、 CeB_6 などの結晶場四重項にも適用できるように発展させたものである。この成果は JPSJ の 2024 年 11 月号に掲載された。

結晶場四重項のゼーマン分裂は磁場の方向に依存するが、これは四重項の八極子と磁場との結合が異方的であることから理解される。磁場方向に量子化軸をとり、その新たな座標空間で定義した八極子で考えると、磁場方向に依存して異なる八極子成分が磁場と結合することがわかる。本研究では、磁場方向を [111] や [110] などの結晶軸に固定し、格子歪みを駆動する SAW の進行方向を [001] に垂直な面内で変えていくことにより、四重項間の遷移強度の SAW 方向依存性を調べた (図 1)。四極子と格子歪みとの結合は磁気音響共鳴の起源であり、その結合に起因して遷移強度に 4 回対称性の成分が現れる。これを解析することにより、その結合定数を定量的に評価することができる。さらに、その周期的な強度変化の振幅に八極子に由来する異方性が現れ、異方性の定量的評価法についても明らかにした。加えて、 CeB_6 のような四極子秩序が起きる場合も、その振幅の変化から秩序

変数に関する情報を得ることができる。

本研究の特筆すべきもう1つの点は、超音波とマイクロ波を組み合わせた、光アシストによる共鳴法の提案である(図2)。通常、超音波の周波数は1ギガヘルツのオーダーが上限であり、エネルギー準位間の幅がそれ以上の強磁場下での測定(CeB₆では数テスラ領域で10~100ギガヘルツ相当)では、超音波の周波数だけで遷移を起こせないため、何らかの工夫が必要となる。そこで、2種類の周波数による電磁波を利用した2光子吸収過程から着想を得て、超音波に加え、遷移に直接寄与しない直線偏光マイクロ波を組み合わせる複合的な遷移過程が、本研究によって提案された。高周波の電磁波と組み合わせることで、テラヘルツ領域においても、四極子の直接観測が期待できる。複合的な遷移の計算では、周期的な時間振動場と結合する2準位系にフロケ理論を適用し、遷移確率に四極子の効果がどのように現れるか明らかにしている。

以上のように、磁性に潜む四極子や四極子に隠れたスピン自由度に着目することにより、従来の光技術にはなかった、超音波による量子状態の多彩な検出や制御が現実のものとなってきている。また、量子ビットの有力候補であるSiC中のV_{Si}スピンは、実は擬四重項として四極子以外に八極子などの豊富な自由度を持つはずである。将来の超音波による量子ビットの制御に向け、多極子の役割の詳細を解明する重要性は高まっており、本研究で提案する手法の確立が強く望まれる。

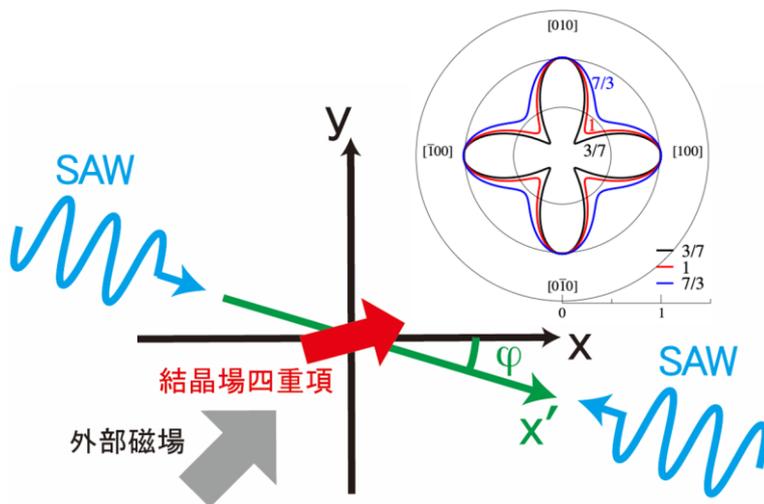


図1: 磁気音響共鳴法の概略図。右上図: 遷移強度の4回対称成分を SAW の進行方向 φ の関数として描いた極座標図。四極子-格子歪み結合によって変化する。

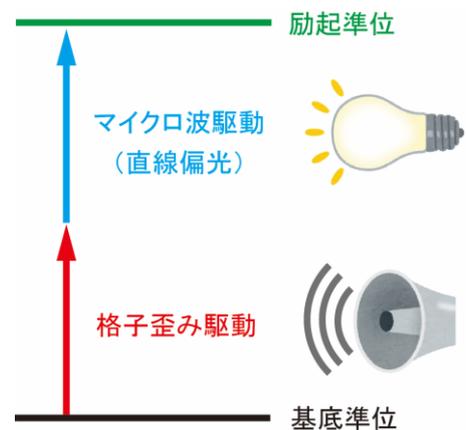


図2: 超音波と光(マイクロ波)を組み合わせた、光アシスト磁気音響共鳴における遷移過程の概略図。

原論文 (2024年10月9日公開済)

Theory of Magnetoacoustic Resonance to Probe Multipole Effects Due to a Crystal Field Quartet,
M. Koga and M. Matsumoto, J. Phys. Soc. Jpn. **93**, 114701 (2024).

< 情報提供: 古賀 幹人 (静岡大学教育学部)
松本 正茂 (静岡大学理学部) >