

ゆらぎによる磁性体の周期構造のくずれ

東北大・工 松原史卓

§1. はじめに

近年競合する相互作用を持つ磁性体において規則的構造に“乱れ”が生じることが問題となっている。この“乱れ”は次の二つに大別される。(i)非常に大きな乱れ。ここでは秩序相それ自体の存在が問題となる。この例としてはスピングラス、二次元系の相転移等の問題がある。(ii)あまり大きくない乱れ。ここでは比較的単純な規則構造がある規則的な変調を受けた構造が現れる。この例としてはANNモデルの長周期構造、競合する異方性を持つ混晶系等の問題がある。今まで調べられてきた“乱れ”はこの二つであるが、これらの中向的なものも考えられる。即ち、長距離秩序は存在するが規則的スピン配列を持たない磁気構造の問題である。この生ずる一つの機構として“規則的スピン配列が不規則な変調を受ける”ことが考えられる。ここではこの可能性について考える。

§2. 不規則変調相(RMP)

ここではある単純なスピン配列を持つ状態(A状態とする)が不規則な変調を受けるための条件について考える。まず、この状態は常磁性相ではなからず、即ち、A状態の不規則な変調によって生ずる状態は常磁性相にはなからず、この為には、条件1: A状態は常磁性相より安定であり、かつこれと等価な状態が他に2つ以上ある(1つのときは変調を受けると常磁性になる)。次にA状態に単純な(揺らぎのない)1つの磁壁を作ってみる。もし磁壁エネルギーが負であるならば、A状態は2つの磁区に分かれる。これをくり返していくと、A状態は規則的に磁壁の並んだ状態になっていくはずである。しかし、これは今考えている状態ではなからず、従って、条件2: A状態は単純な磁壁の生成に対して安定である。上の考察では磁壁の出現によるエントロピー利得が考えられている。もし壁が揺らぎ、このことによるエントロピー利得が磁壁エネルギー損失より大きくなると、A状態には磁壁が出現し得る。即ち、条件3: A状態で現れる磁壁は、そのエネルギーが非常に小さく、熱的な揺らぎに対して不安定である。不規則変調が起るためには以上の3条件が必要であると考えられる。このようにして生じた状態を以下不規則変調相(RMP)と呼ぶことにしよう。

以上のことから出てくるRMPの特性として次のことが予想される。

- (i)本質的に非常に大きく揺らぐ相である。
- (ii)長距離秩序は存在する。しかし、それは新しい形のものであろう(A状態の秩序パラメータはRMPの秩序パラメータにはなからず)。
- (iii)温度が下がると単純相(A状態に近い状態)に移る。この転移は高次であろう。

さて以上のことを定量的に考察しよう。我々の課題は磁区生成自由エネルギーを求めることである。¹⁾ここでは良く知られたイジングモデルの T_c を評価する方法を応用してこれを求めてみよう。今A状態の中に表面積 S 、厚さ(格子点数) n の磁壁によって囲まれた磁区が生じたとしよう。ここで磁区はA状態と全く等価な別の状態とする。磁区生成エネルギー $f_D(S)$ は一般に次のように表わされる。

$$f_D(S) \simeq \langle S f_{wn} - kT \ln W(S, n) \rangle \dots \dots \dots (1)$$

ここで f_{wn} は厚さ n を持つ磁壁の単位表面積当たりの自由エネルギーであり、磁壁面の方向により異なる。 $W(S, n)$ は磁壁エネルギー $S f_{wn}$ をもつ磁壁の並べ方の数である。又、 $\langle \dots \rangle$ は S を指定したときの $S f_{wn}$ についての平均を表わす。問題は f_{wn} 及び $W(S, n)$ を求めることであるが、これは簡単ではない。そこで大雑把な評価を試みる。 f_{wn} は近似理論(例えば分子場近似)を使って評価する。 $W(S, n)$ は以下の様に T_c 及び単位面当たりの表面エネルギー ϵ_0 と関係づけられる。

今全てのスピオンが飽和値をとっているとし、その中に全てのスピオンが反転した磁区が生じたとする。磁壁は厚さ $n=0$ とする。十分大きなこのような磁区が生ずるときA状態から常磁性状態に移ると考えられる。従って $\lim_{S \rightarrow \infty} \langle 2\epsilon_0 S - kT_c \ln W(S, 0) \rangle = 0$ である。ところで $S \rightarrow \infty$ で $W(S, 0) \simeq C_0 S^d$ と表せる。故に $kT_c \simeq \langle 2\epsilon_0 \rangle / \ln \langle C_0 \rangle$ となる。

ところで今考えている磁区は S 有限であり、かつ $n \neq 0$ である。この場合、もし全ての面で f_{wn}/ϵ_0 がほぼ一定であるなら、 $W(S, n)$ は次のように評価できる。まず磁壁の厚さ n を0とスケール変換することにより $S \rightarrow S/(n+1)^{d-1}$ と置き換えられる。ここで d は空間次元数である。更に磁区は有限の厚さを持たなければならぬ。このことは S を更に減少させる。これは n が小さいとき問題になる。従って S は $S/(n+1)^{d-1}(1+c_1 e^{-kn})$ と置き換えられると仮定する。(別の見方をすると磁壁間の相互作用を仮定することになる。)次に有限サイズを考慮すると C_0 は $C(S)$ と置き換えられる。 $C(S)$ は単調増加関数であり $S \rightarrow \infty$ で $C(S) \rightarrow C_0$ となる。以上より

$$f_D(S) \simeq AS \{ \langle f_{wn} R(n) / 2\epsilon_0 \rangle - g(S) t \} \dots \dots \dots (2)$$

と表わせる。ここで $A = \langle 2\epsilon_0 \rangle / \langle R(n) \rangle$, $t = T/T_c$, $g(S) = 1 + \ln \langle C(S) \rangle / \ln \langle C_0 \rangle$, $R(n) = (n+1)^{d-1} (1+c_1 e^{-kn})$ である。サイズ効果を表わす $g(S)$ はやはり単調増加となる。これを今 $g(S) \simeq 1 - a/S + b/S^2 - \dots$ と仮定しよう。結局、 $f_D(S)$ は

$$f_D(S) \simeq A (f_\infty(t) S + at - bt/S) \dots (3)$$

$$f_\infty(t) = \langle f_{wn} R(n) / 2\epsilon_0 \rangle - t \dots (4)$$

となる。図1にこれを図示する。 $f_\infty(t) < 0$ でRMPが起ることになる。又磁区の大きさはたかたか $S_{max} \simeq -at/f_\infty(t)$ である。

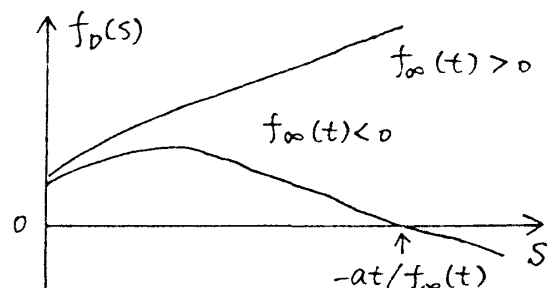


図1. $f_D(S)$ の S 依存性

§3. 六方晶反強磁性イジングモデルの秩序相

前節の方法を使って次のハミルトニアンで記述される六方晶反強磁性イジングモデルの秩序相の問題を求めよう。¹⁾

$$H = -\frac{J_0}{2} \sum \sigma_i \sigma_j + \frac{J_1}{2} \sum \sigma_i \sigma_j - \frac{J_2}{2} \sum \sigma_i \sigma_j \quad ; \quad J_0, J_1, J_2 > 0$$

ここで J_1 , J_2 , J_3 項はそれぞれ c 軸方向, c 面内最近接, c 面内 2 最近接相互作用を表わす。この系の秩序相は互に入り組んだ等価な 3 副格子 (α, β, γ 副格子) モデルを使って調べられてきた。近似理論より予想される秩序相は高温側では部分反強磁性相 (PDAF)、低温側でフェリ磁性相 (FR) である。これらの相の特徴として、いずれも 6 つの等価な状態があり、かつ PDAF 相と FR 相は互いに磁区と磁壁の関係になり得る (図 2)。

従って、仮りにいずれかの均一相が実現したとしても、PDAF 磁壁エネルギーは普通の強磁性のそれと比較して非常に小さくなる事が予想される。即ち、FR これらの相は §2 で述べた 3 条件を満たし、従って不規則変調を受けると予想される。分子場近似を使い磁壁自由エネルギーを求めた結果を図 3

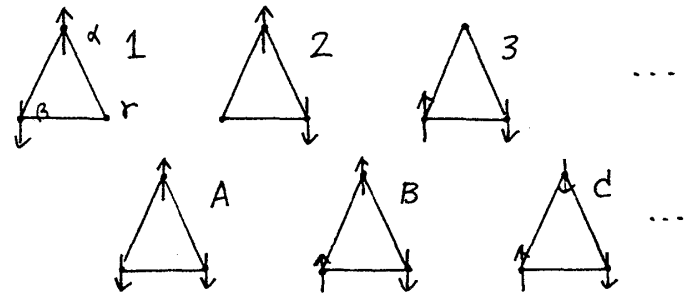


図 2 PDAF と FR。互いに磁区と磁壁になる。

を示す。 $f_{wn}/2\epsilon_0$ は面の方向にはあまり依存せず、従って $f_0(s)$ の評価に §2 の (3) 式が使える。 $f_0(t)$ を評価した結果を図 4 に示す。 $f_0(t)$ は高温側で負になり、この系では RMP が起り得ることを示している。

図 3 $f_{wn}/2\epsilon_0$. $J_0/J_1 = 10, J_2/J_1 = 0.1$

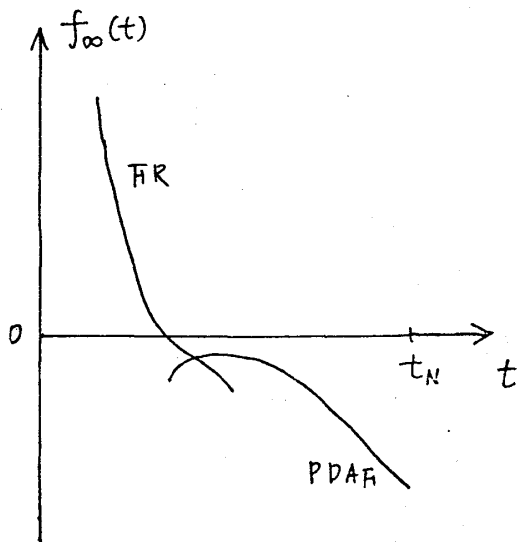
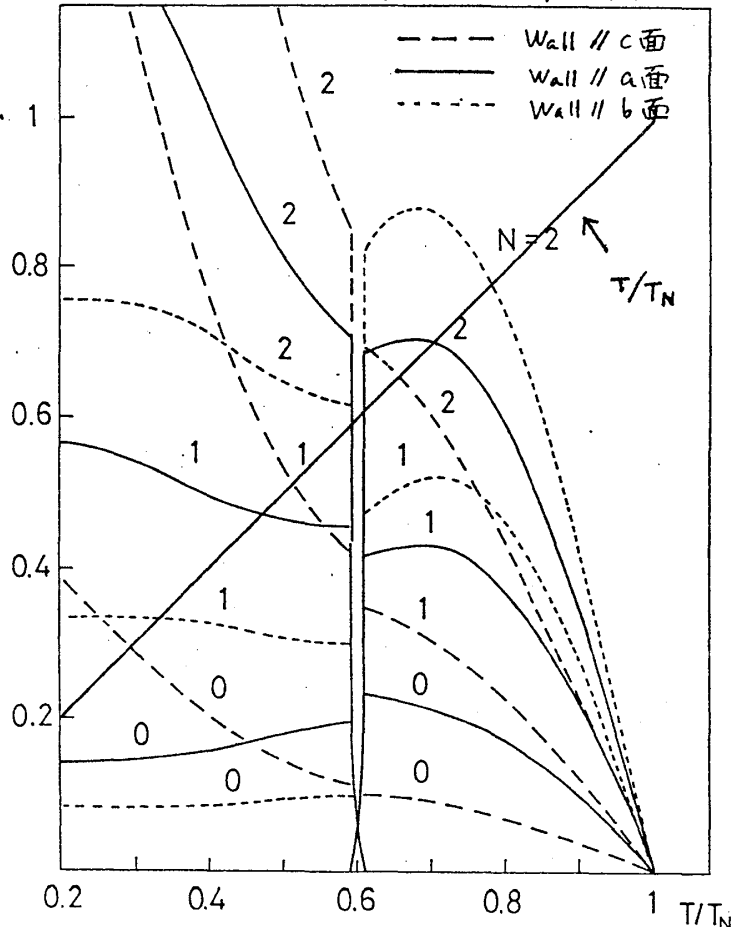


図 4 $f_0(t)$ の t 依存性

これを確かめる為に計算機実験を行った²⁾。結果を5~7図に示す。図5から分かるように $T/J_1 \sim 1.8$ で比熱は発散し、秩序相が生じる。しかし、副格子磁化は大きく揺らぎ、この相が PDAF か FR か定めることはできない。この状態でのスピン配列 (50ステップの平均) を示したのが図7である。これより T_N より下のある温度領域でスピン配列は不規則に乱れていることがわかる。これは RMP の存在を強く支持する結果になっている。この相の秩序パラメータは副格子磁化ではなく、次の相関関数をとるべきであろう。

図5. 比熱 vs T

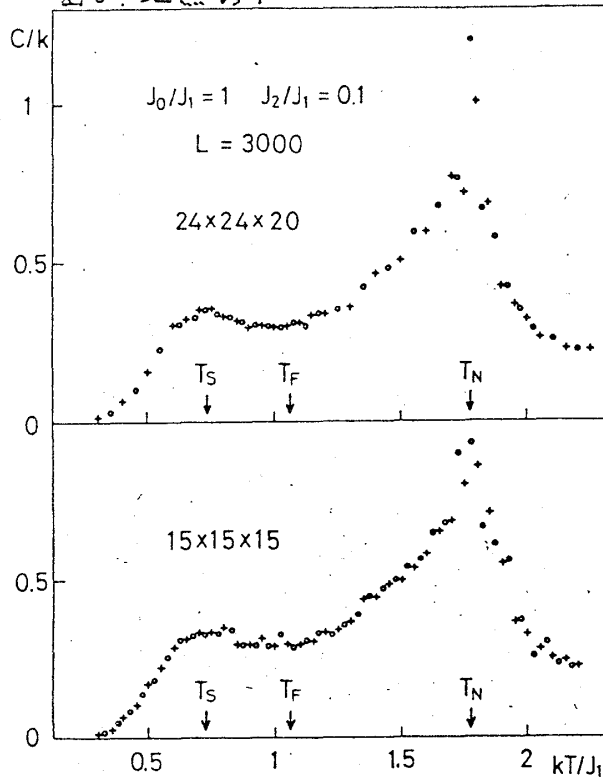
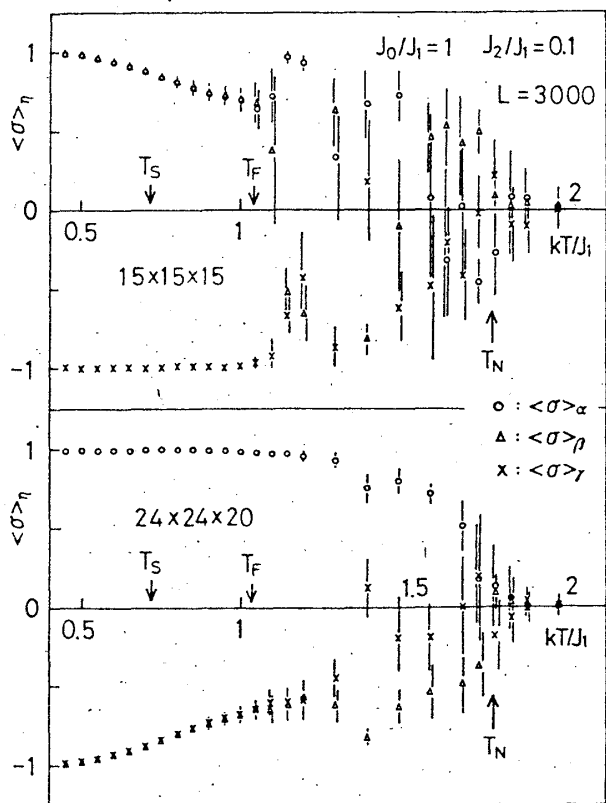


図6 副格子磁化の温度依存性



不規則に乱れていることがわかる。これは RMP の存在を強く支持する結果になっている。この相の秩序パラメータは副格子磁化ではなく、次の相関関数をとるべきであろう。

$$\gamma = \lim_{n \rightarrow \infty} \sum_{\eta = \alpha, \beta, \gamma} \left\{ \langle \sigma_0 \sigma_{3n} \rangle_\eta - \frac{1}{2} (\langle \sigma_0 \sigma_{3n-1} \rangle_{\eta'} + \langle \sigma_0 \sigma_{3n+1} \rangle_{\eta''}) \right\} \quad \dots (5)$$

ここで $\eta' = \beta, \gamma, \alpha$; $\eta'' = \gamma, \alpha, \beta$ である。

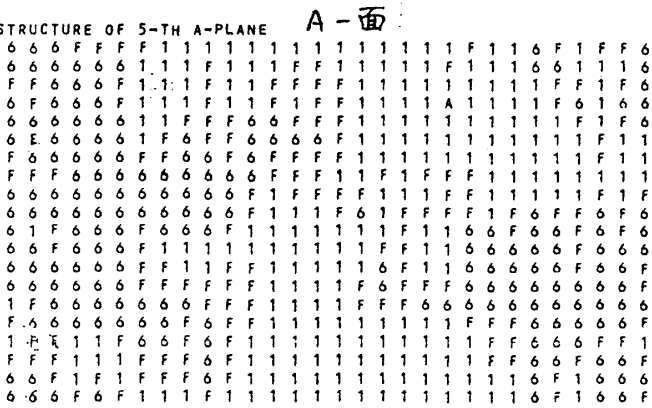
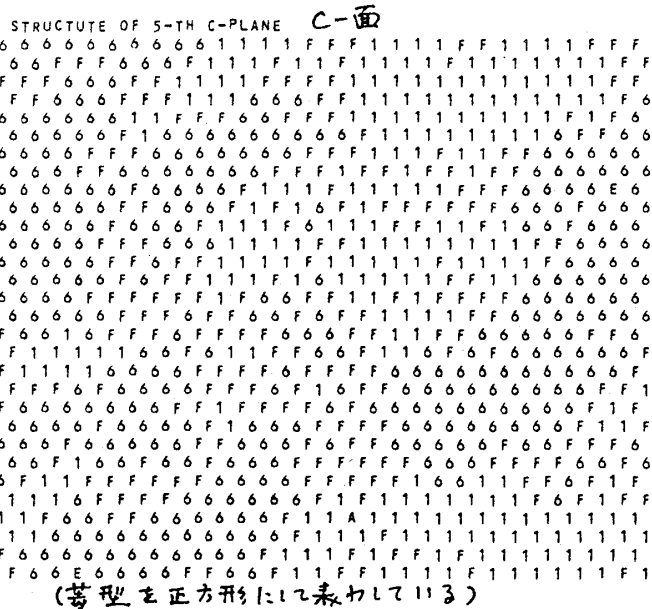


図7. C面及びA面でのスピン配列 ($T/J_1 = 1.4$)
1-6は PDAF, A-Fは FR を示す。
(各々の三角要素のスピン配列を示している。30x30x20の系)

§4. まとめ

規則的スピン配列(均一相)が不規則に変調され、新しい型の秩序相(不規則変調相RMP)が生じる可能性について論じてきた。この相は均一相が不規則な形を持つ磁区に分かれることにより実現する。我々は磁区生成自由エネルギー $\chi_D(S)$ を評価する一つの方法を与え、この方法をもとに六方晶インジウム反強磁性モデルの秩序相の問題を考えた。このモデルでは T_N より下のある温度領域で $\chi_D(S) < 0$ となりRMPが実現する可能性があることが示された。計算機実験の結果はこれを支持しているようである。

このモデルで記述できる物質として $CsCoCl_3$, $CsCoBr_3$ 等がある。³⁾これらは T_N 以下のある温度領域でPDAF的性質を示すが単一相にはなっていない。又、この温度領域で中性子非弾性散乱が見られる、予想されるPDAFからFRへの相転移において比熱の異常が見られない等、今までの単純な近似理論では説明できない性質も示す。これらはRMPの実現を強く示唆しているものと思われる。

RMPは六方晶反強磁性体に特有なものではない。競合する相互作用を持ち、かつ等価な多くの(少なくとも3つ以上)状態を持つ他の系(LANNNモデル⁴⁾, FCC反強磁性体等)でも生ずる可能性がある。今後これらの系の研究も期待される。

文献

- 1) F. Matsubara: *Solid State Commun.* 46 (1983), 329.
- 2) F. Matsubara and S. Ikeda: *Phys. Rev. B* 28 (1983), 4064.
- 3) 目片守, 足立公夫: *固体物理 Vol 17* (1982) 493
- 4) P. Bak and J. von Boehm: *Phys. Rev. B* 21 (1980), 5297.