

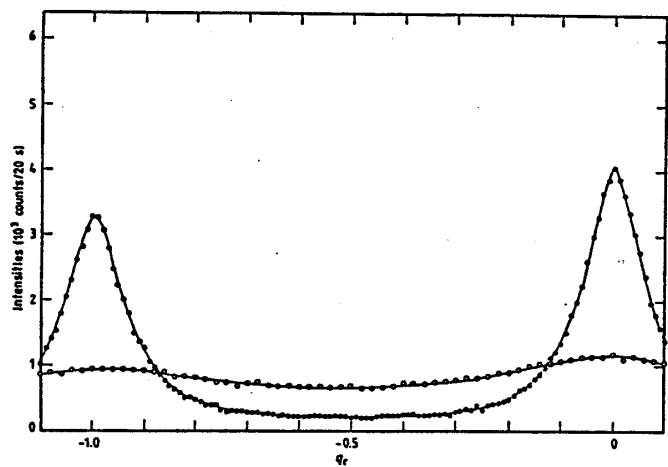
1次元秩序形成とスピン相関関数

お茶の水大理 池田 宏信

2次相転移を示す磁性体を、たとえば試料温度を急冷して、常磁性(無秩序)状態から相転移点以下の温度に移したとする。はじめ混とんとした無秩序の状態から、次第に小さな磁区からなる秩序が見え出し平衡状態である長距離秩序に移るさまを観測すること、また、このような空間的パターンの時間的变化に普遍的な法則を見出すことは興味深い。しかし、このような現象を磁性体を用いて実験的に観測することは不可能に近いと考えられてきた。秩序無秩序転移を示す磁性体は数限りなくあり、その秩序の形態はスピン間の交換相互作用 J によって支配される。例えば数10Kに相転移温度をもつ磁性体の交換エネルギーは 10^{10} Hzに相当する周波数に達し、従って無秩序状態から始まり秩序形成が進行する時間スケールは 10^{-10} sec というマイクロなものになると予測されるからである。磁性体の秩序の発展を観測する最も優れた手段である中性子散乱も、このような早い時間発展に追従することは出来そうもない。しかし、次に述べるように、やや特殊な例ではあるが、十分にモデルの確立できる磁気秩序形成過程におけるスピン相関関数の実時間測定を行ったので、その実験にいたる背景、実験結果、なすびに結果の解釈、問題点について報告する。

用いた試料は2次元Ising型反強磁性体 Rb_2CoF_4 を非磁性Mg原子で希釈した $Rb_2Co_{0.7}Mg_{0.3}F_4$ である。希釈磁性体を用いた理由は後で述べることにする。一般に、 K_2NiF_4 型と呼ばれる一群の層状磁性体は最も2次元に近い磁性体と考えられている。正方格子からなるC面内のスピンは強い反強磁性相互作用 J で結合し、面内のスピン間相互作用 J' は J と比べて 10^{-5} 程度の小さな値しかもたない¹⁾と見積られている。もちろん、この小さな J' がもし有限の J' の値のため、ネール温度以下でのスピンの秩序は平衡状態では当然の次元配列を示す。これを中性子散乱で見ると、磁気弾性散乱はいわゆるブラッグ点に集中して観測される。ところが、これらの層状磁性体を常磁性状態から低温へと急冷すると、スピンの配列が全く異なることに気がついた。つまり、急冷後はC面内のスピンは強い交換相互作用 J のため長距離のために秩序を示すが、C面内のスピン配列は無秩序になるのである。このことは中性子弾性散乱強度が q_c 軸方向に一定な棒状分布すること²⁾で明らかである。第1図に試料温度徐冷後と急冷後の磁気弾性散乱強度の q_c 軸方向の分布の測定例を示す。(100)点がある次元スピン配列を反映した磁気ブラッグ点であるが、第1図に見られるように急冷後の散乱強度は q_c に依存せず、層と層との間のスピン配列にコヒーレンスが全くない状態が実現されていることが分る。しかし層間の相互作用 J' は常に存在し3次元スピン配列を指向するのであるから、急冷後にあらわれた2次元秩序は非平衡状態である。この2次元秩序は低温では安定で、長時間を経ても平衡状態である3次元秩序に移行しない。しかし温度をネール温度に近づけると、この磁気ブラッグ棍は時間的に変化し、ブラッグ点に向って移行する。つまり、2次元秩序から3次元秩序へと緩和する。

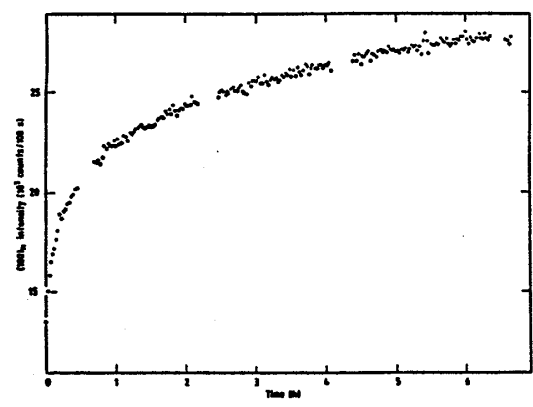
温度急冷後にc面内無秩序状態ができることは、Ising 反強磁性体 Rb_2CoF_4 、Heisenberg 的反強磁性体 Rb_2NiF_4 およびこれらの混晶また希釈系全体にわたって確認される。しかし、3次元秩序へ向う緩和の原動力がいわゆる臨界熱揺動であることを見極めたうえで、上記の希釈 Ising 反強磁性体 $Rb_2Co_{0.7}Mg_{0.3}F_4$ を実験試料として選んだ。 Rb_2CoF_4 ($T_N=103$ K) または K_2CoF_4 の磁気的諸特性はすでに詳しく調べられ、その臨界現象は2次元 Ising モデルの厳密解に一致することを確認、またスピニングナミクスの測定による交換相互作用



第1図. (100) 方向の磁気散乱の分布 ($T=5$ K). 白丸, 黒丸 γ - γ はそれぞれ試料急冷後, 徐冷後をあらわす. $Rb_2Co_{0.7}Mg_{0.3}F_4$.

の決定などにより、この物質が現存する磁性物質の中では最も理想的な2次元 Ising 磁性体としての特徴を備えていることが明らかにされている。またこれを非磁性原子で希釈した $Rb_2CoMg_{1-x}F_4$ の諸特性も明らかにされているが²⁾、ここで使用した $Rb_2Co_{0.7}Mg_{0.3}F_4$ はネール温度 42.9 K で秩序無秩序転移を行う。ネール温度以下の温度での磁気弾性散乱強度は希釈のため大巾に減少し、それに相対的に臨界散乱強度は増大している。従って、ネール温度直下の温度では、臨界揺動の方がむしろ弾性散乱強度よりも強い温度領域がかなり広範囲にわたって観測される。このことは3次元秩序への緩和現象を観測するうえで、温度の設定等の点で大変有利である。以上が希釈磁性体 $Rb_2Co_{0.7}Mg_{0.3}F_4$ を試料として用いた理由である。

緩和現象の観測例をつきに示す(第2図)。試料を 70 K から 5 K まで急冷して層内無秩序状態をつくり、たのち温度をネール点近く (41.819 K) まで数10秒の間に一定に上げた後の、(100) 磁気逆格子点上の散乱強度の時間依存性を図に示してある。(100) 強度の増大はそのまま3次元秩序の形成に対応している。この場合、面の反転のくり返しにより、安定な3次元秩序が形成されることになる。従って、この現象は、c軸方向についての1次元秩序形成の問題としてモデル化できる。さて問題は磁区成長の時間依存性であるが、それを見やすくするため



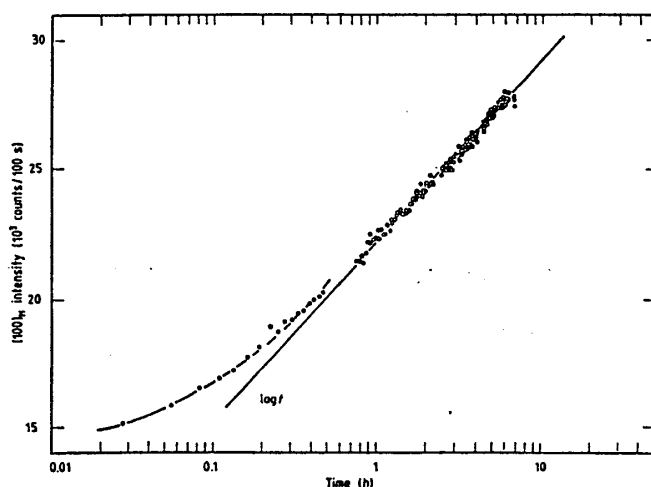
第2図. $Rb_2Co_{0.7}Mg_{0.3}F_4$ の (100) 散乱強度の時間変化. $T=41.819$ K.

に第2図と同じ (100) 強度を対数プロットしたものを第3図に示した。強度は秩序形成の初期の段階をすぎると $\log t$ に依存して増大することが分る。またさらに、磁区の大さきの時間変化を直接知るために各時刻で q_c 方向の散乱強度を測定した。秩序形成をはじめ

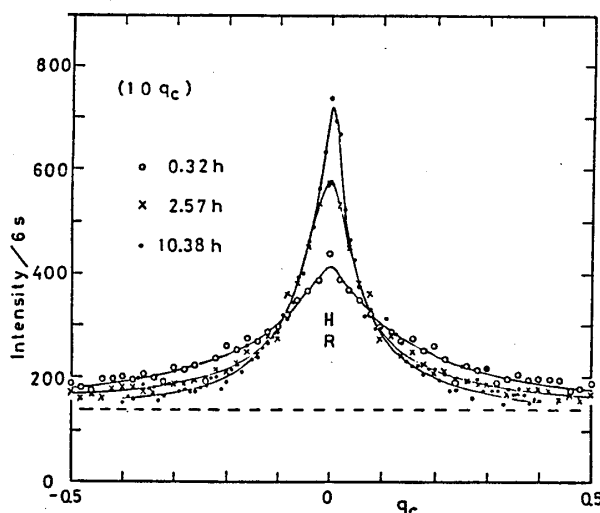
めこから約10時間に及びまで、計33個の異なる時刻で測定を行った。散乱肉数の測定例を第4図に示す(秩序形成をはじめて、それぞれ0.32, 2.57, 10.38時間経過したとき)。時刻の経過とともに、 q_c 方向の幅が減少し、 c 軸方向のスピンの結合のコーレンシ-が増大するこが見てとれる。半値巾の逆数は c 軸方向に結合した面の枚数(磁区のサイズ)に相当する。これも図示したのが第5図であり、第3図も参照して考えると、層と層との層間が7~8枚に及んだころから $\log t$ の関数に従って秩序が進展するものと結論できる。この実験は少なくとも25層に相肉が及びまでは $\log t$ 則が成立してゐることを示す。つぎに、散乱肉数をスケーリングプロットした図を第6図に示す。これは先に述べた33個のデータを、縦軸は $q_c=0$ の点で1に規格化し、横軸は各データの半値巾(q_m)で規格化したものである。これから分かるように、全てのデータが一つの曲線上にのりてあり、スケーリング則がこの秩序形成に対して成立するこが見てとれる。散乱肉数は $I(t) S(q_c/q_m(t))$ ($n=2$, $q_m(t)^{-1} \propto \ell(t)$, $\ell(t)$ は磁区のサイズで $\ell(t) \propto \log t$) で表わされる。しかし、第6図に示すように、肉数 $S(k)$ は単純なローレンツ型ではなく、この $S(k)$ の k 依存性についての十分な理解は今このとこで得られていない。

ここで緩和時間の温度依存性について一言ふれておく。測定温度をネール温度に近づけるにつれて緩和は早くなり、かつ時間変化は第2図に示した例と全く同一の肉数で記述できる。時刻を臨界揺ぎ T_c (スタガード帯磁率)の逆数でスケールすると、異なる温度でのデータが全て一定の肉数にのることから、層のくり返し反転にともな、秩序形成は熱揺ぎと密接な関係にある

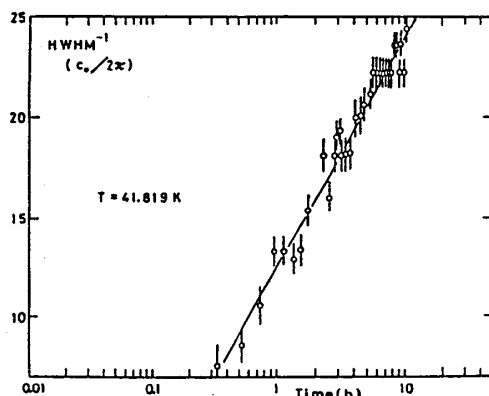
こゝで緩和時間の温度依存性について一言ふれておく。測定温度をネール温度に近づけるにつれて緩和は早くなり、かつ時間変化は第2図に示した例と全く同一の肉数で記述できる。時刻を臨界揺ぎ T_c (スタガード帯磁率)の逆数でスケールすると、異なる温度でのデータが全て一定の肉数にのることから、層のくり返し反転にともな、秩序形成は熱揺ぎと密接な関係にある



第3図. 第2図のデータを片対数プロットしたものである。



第4図. $(10 q_c)$ 方向の散乱肉数を3つの異なる時刻で測定したものである。Rは分解能巾を表わす。



第5図. $(10 q_c)$ スキャンの半値巾の時間依存性。直線は磁区サイズが $\log t$ に従って増大することを示す。

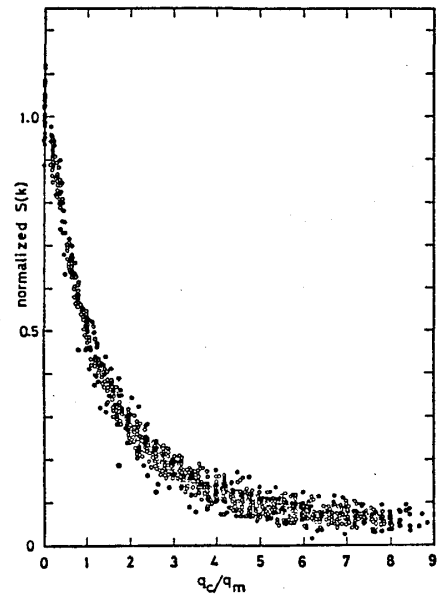
ことが分る。

以上述べた実験は、熱振子の大きい系における1次元系の秩序形成の観測例を与えると見なすことができる。各層内のスピノが揃った層状磁性体において、層間の磁区の時動的成長が測定されたこととなる。相転移における秩序形成の統計学的研究は古くからあるが、最近 Kawasaki を中心とするグループが新しい理論を展開している³⁾。秩序形成の問題を正しく記述するには非線形項をとり入れた理論が強く要望される。この非線形項の結果として系は磁区構造をとり、この磁区のパターンが時間的に成長して行くことは数多くの実験(スピノ-ゲル分解等)で認められている。最近 Nagai と Kawasaki⁴⁾ は上記層状磁性体の実験が1次元キーク・反キークの対消滅過程として扱えることを示した。彼らは、TDGL 模型から出発した1次元系の問題はキーク・反キークの集合からなる磁区の成長の問題に縮約できることを示し(第7図)、かつ、キーク(界面)の運動を論じた。そしてキークと反キークが接触すると同時に界面は消え、その結果キーク反キーク間の平均距離(磁区の大さき)は増大する。しかもキーク間の指数反発型引力相互作用の帰結として磁区の成長は $\log t$ 依存性をとることを示しており、前記の実験結果とよく一致する。

なお、上記の実験で求めた相関関数(第6図)は、先にも述べた通り、ローレンツ型からはずれた関数形をとるが、これが非磁性原子混入による磁性原子の不均一性からくるのか等、今後実験的に確かかなければならぬ点も残されている。

文献

- 1) H. Ikeda: J. Phys. C 16 (1983) 3563. 池田 宏信: フィジクス 6 (1985) 444 及び未発表.
- 2) 池田 宏信: 日本物理学会誌 34 (1979) 792, 固体物理 16 (1981) 86.
- 3) 川崎 恭治: 日本物理学会誌 38 (1983) 919.
- 4) T. Nagai and K. Kawasaki: Physica 120A (1983) 587.



第6図. 相関関数のスケールプロット.



第7図. 1次元キーク系の秩序変数の空間分布。1個の矢印は実験では1つの面に対処する。