

CsCoCl₃の相転移の中性子散乱

東北大 理 遠藤康夫

序

三角格子Ising反強磁性体の相転移という観点でCsCoCl₃はの相転移を整理してみたい。CsCoCl₃はhexagonal perovskite型結晶に属するイオン結晶でCoイオンに局在する磁気スピンの異方性が強いのでfictitious spin $\sigma_z = \pm 1$ でCoイオンの磁化を書き表す。C軸方向に隣接する強磁性相互作用がC面内のそれに比べて極端に強い為に近似的に次の様なHamiltonianでその磁性の概略が理解されてきた。

$$\mathcal{H} = - \sum_{i>j} z J \sigma_i^z \sigma_j^z + \sum_{i>j} xy J' \sigma_i^z \sigma_j^z,$$

$$J' / J \sim 0.56 \times 10^{-2} \quad z//C$$

このHamiltonianから想像されることは1次元Ising反強磁性の性質であり、事実平川、吉沢等に代表される研究で1次元Ising特性は既によくわかっている。ところが、最近「三角格子」特有のfrustrationの効果がこのような鎖構造を持つCsCoCl₃に反映されていることが見つけれられたのは興味深いことである。本研究会の主題も、専らこの点であって、CsCoCl₃で一体frustrationの効果が具体的な形でどのように見えているかを探ってみる。つまり私の話はCsCoCl₃という反強磁性体の相転移の実験事実を出来るだけ忠実に伝えて、何が問題かを考えてみよう。

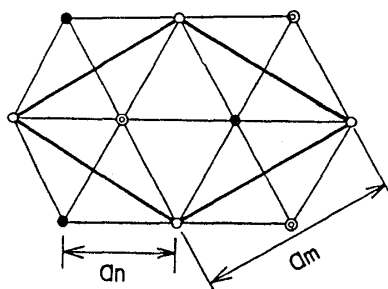


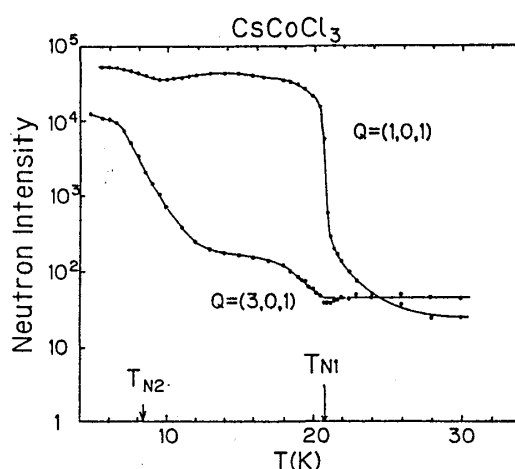
図1 四 CsCoCl₃の2次元単位胞

[1] CsCoCl₃の反強磁性構造

CsCoCl₃のCoイオンはC面内に三角格子をつくり、0° Kではuud配置（量子化軸に沿って $\sigma_z = 1$ の状態をu, -1 をdと定義する）をとる。勿論、3次元的に秩序状態であるから、全体として強磁性成分はない。このような状態の三角格子の反強磁性副格子はCoイオンの作る基本的格子の3倍周期をとるので、基本格子の指数をとる反強磁性副格子の指数関係は次の通りである。

$$H_m = \frac{3}{2}(h+k), \quad K_m = \frac{3}{2}(h-k)$$

Mekata等によって主張されたように、温度を下げるとuud状態からもう1つのいわゆるPartial Order(POD)相を通過して無秩序相へと移行することは次の我々の測定結果から見ても明らかである。但し、ここで問題になるのは、uud相の存在を示す(3,0,1)の磁気散乱強度は、POD相に於ても全く零にはならないことである。ここで、 $l=1$ というのは、c軸方向に反強磁性的に強度配列をしていることに対応している。

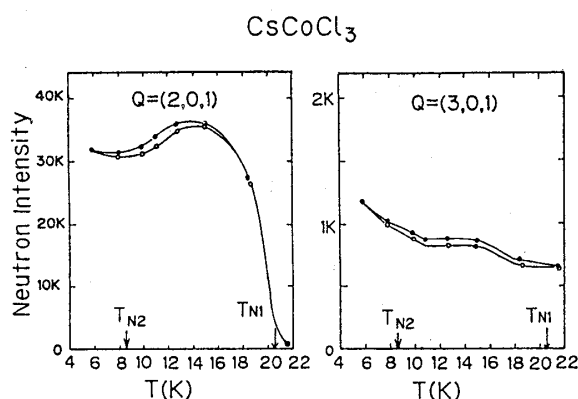


オ 2 図 副格子温度変化

[2] CsCoCl₃の磁気相転移

下の図は各々POD,uud相に対応するブラッグ点での磁気散乱強度の温度履歴の様子を実験した結果である。この結果を見ると特に、8—14K付近に大きな温度履歴が見られる。又、ブラッグ点を少しはずした磁気散乱の温度変化を測ってみると、やはりこの温度付近にはっきりした履歴が表れた。図のT_{N1}、T_{N2}と矢印をつけた21 Kと8.5 KはNeel点及びPOD,uud相転移といわれている温度で、Neel点T_{N1}は臨界発散に伴う磁気散漫散乱のピークの出る温度に一致し、T_{N2}は(301)ピークの温度変化の最も激しい点をもって決めた。しかしこのT_{N2}付近の磁気散漫散乱の温度変化の様子はT_{N1}付近のそれとは全く違っている。ここまでの実験結果を見

て、 T_{N1} は典型的な2次転移であるが T_{N2} ではむしろ不連続相転移とはいえない。



オ 3 図 副格子磁化の履歴

ここで少し理論の結果と対比して見よう。この問題は既に、Matsubara等による面間相互作用を取り込む上記のハミルトニアンによるMonte Carlo 計算や、Grest等による Landau Ginzburg Willson 理論、すなわち6回対称の破れをもつ2次元XY Hamiltonianによる置き換えを行った際のMonte Carlo計算等があり、相転移に関して、ある程度の理論的指針が与えられている。その結果から、PODの実態らしきものは、前者ではuudとuddとの交代したもの、後者では $(M, -M, 0)$ 相であると示唆されている。また、PODとuud相との転移も1次相転移的不連続の存在を示唆している。しかし厳密には、比熱にはjumpが示されていない。ただ、これらの計算は CsCoCl_3 の状況とは随分異なっており、C面内の相互作用の方がC軸方向の相互作用より強いのか、同程度位しか取り扱えない。又、 CsCoCl_3 ではスピン空間でIsing性が完全ではなく横成分は約10%混じっているため、計算で取り扱われているモデル系との違いをはっきり理解しておく必要がある。

〔3〕POD相の存在と相転移

三角格子Ising反強磁性体及びそれが弱く3次元的にcoupleした系を取り扱う理論で予想されているPOD相は副格子磁化の温度変化等の実験を見るかぎり、その存在を否定するものではない。しかしこのPOD相の実体はまだ見ることができない。そもそも、“Partially ordered” という言葉の定義も曖昧なものであるが、理論で示唆された通りのものかと問われても、又、磁気相転移を厳密に定義することも実験事実を見て確定的に答えることは難しい。

さて、 CsCoCl_3 の場合、中性子回折で、PODとuud相との区別は、前者が $H + K = 3n$ が禁制反射となるのが唯一の直接的決め手である。第一図のように我々の実験では中間の温度 $8.5K < T < 21K$ でも $(3,0,1)$ 反射が残っている。 $(1,0,1)$ 、 $(3,0,1)$ の磁気反射の広がり Γq の温度変化は面内方向と面間方向では異なる様相を呈し、面内の線巾は T_{N2} 付近で急激にsharpになるのに面間(鎖)方向のそれは、 T_{N2} に向かってむしろexponentialに狭くなる。この物理的状態につい

では後で触れるが、注目すべき点は、このような振舞いはやはり、POD相が単純なものでないことの1つの証拠であろう。

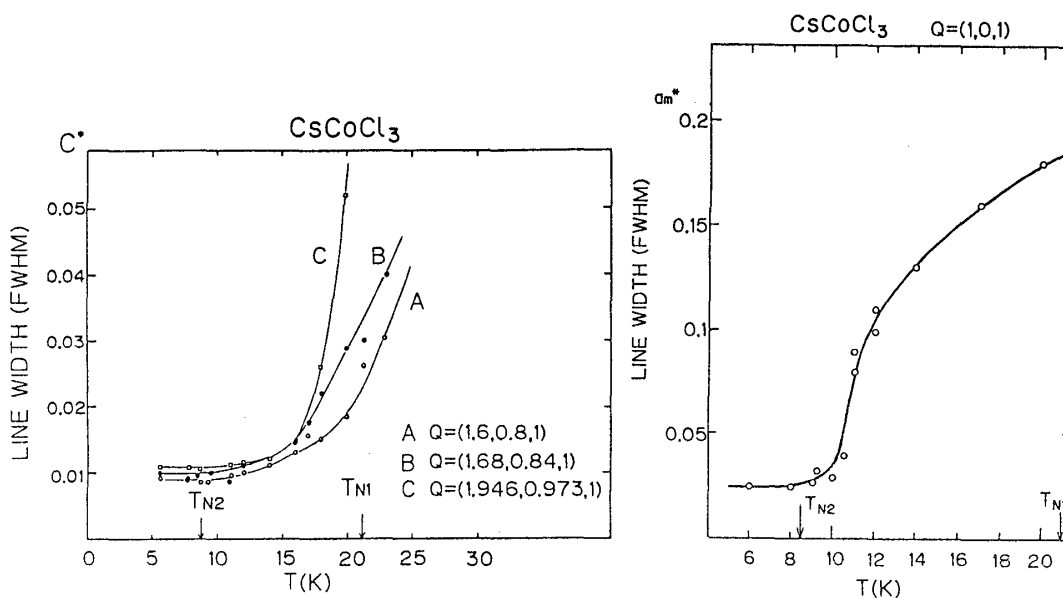


図 4 磁気散乱の線幅の温度変化

もうひとつの実験事実はShibaによって指摘されたRaman分光によるマグノンサイドバンドの実験で、図に示したように、 T_{N2} 以下でPOD相が残る事実と $T_{N2} < T < T_{N1}$ でuud相が残ることも示唆され、これらの実験が必ずしもGround stateを直接見るわけではないが、我々の実験が示す $T_{N2} < T < T_{N1}$ でのuud相の残存とは一致する。 T_{N2} 付近での温度履歴やブラッグ散乱強度の散漫散乱の強度の時間的変化の実験とは符号するものがある。依然として T_{N2} での狭義の相転移は否定的なものと解釈している。

[4] 相転移の物理

CsCoCl_3 のC軸方向に伝播するSolitonによる中性子散乱が T_{N1} 以下でも観測される。この実験を行ったBoucher等は T_{N2} こそSolitonが凍結する温度であると主張しているが、その根拠もそれほど確かではない。すなわち、Solitonの動きが活発でなくなると鎖同士の相関が変化することは、1次元鎖の不純物効果が鎖間の相関に鋭敏な効果をもたらすことから想像したものであろうが、 T_{N2} が相転移点と定義されるかどうかは未だ説得力が乏しいと考えている。

一方で、Matsubara等が示唆したような面内での $\text{uud} \leftrightarrow \text{dud} \leftrightarrow \text{udu}$ domain 間の sublattice switching 等による描像も考えられなくはない。 $\leftrightarrow$ 間の遷移が許されて結果的にある緩和時間で容易に、u,dの入れ換えが起こっているというもので、我々の副格子磁化の温度履歴や、時効の実験を説明するモデルとなっているともいえる。しかし直接domain wallの動きを見たわけではないので、単なる想像に過ぎない。実験家としてはideaに富んだ手段でこの相転移や、POD相

研究会報告

を詳しく観察する研究を考えてみたいものだ。磁気ドメインの存在や、緩和時間の長い磁化の揺動によって、偏極中性子が磁性体内を通過する間に、その偏極成分を失う実験方法がある。我々はパルス偏極中性子を使うので、その波長による偏極度解析を調べる方法を開発したので、このような問題にも応用してみたい。