

乱れた系のスピン相関と中性子散乱

高エネルギー物理学研究所・ブースター利用施設 池田宏信

1. 序

中性子散乱は、物質の微視的情報を直接検出することによって物質の示す様々な現象の起源を理解するための実験手段である。散乱強度が、物質の構成要素の2体時空相関関数で書けるといふ大きな特徴をもち、かつ、揺動散逸定理によって複素感受率を運動量及びエネルギー空間の広い領域にわたって測定できるため、これまで物性物理の分野で数限りない実験研究がなされてきた。現在、中性子散乱法は、物性物理を含め、生物、科学、高分子、材料科学、基礎物理等広範囲な諸科学の分野の研究にとって必須の実験手段であると共に、定常中性子源（原子炉）の利用のみならず、近年急速に発展した加速器を用いて発生させるパルス中性子源の利用によって、運動量及びエネルギー領域の格段の拡大が達成され、今後中性子散乱の重要性はますます高くなりつつある。

中性子は他の粒子線を用いた散乱実験と異なり、原子による散乱のみならず、中性子が磁気モーメントをもつことから可能となる磁性体からの散乱を精度よく測定できる。磁性体の相転移、磁気励起の研究は古くから多くの研究があるが、近年、乱れたスピン系の研究についても興味が集められ、多くの問題が解かれてきた。これらの話題の中から、以下のような課題について、問題の背景、実験によってどのようにして問題が解かれてきたか、についてお話する。

2. 中性子散乱法の原理と一般化帯磁率

物質を構成する原子の磁気モーメントと中性子の磁気モーメントとの間の双極子相互作用が、磁気散乱を生じる主要なメカニズムである。その相互作用は電子と中性子の距離をイオンの半径程度にとると 10^{-3} K 程度であり、通常の散乱実験に使われる熱中性子の運動エネルギー 10^3 K に比べて非常に小さい。従って、散乱の確率を計算するにはボルン近似が使われる。一つの中性子(運動量 \mathbf{k}_0 、エネルギー $k_0^2/(2M)$) が試料と散乱の後、運動量 \mathbf{k}_1 ($=\mathbf{k}_0-\mathbf{Q}$)、エネルギー $k_1^2/(2M)$ ($=k_0^2/(2M)-\omega$) の状態に移ったとする。 \mathbf{k}_1 方向へ散乱される中性子の微分散乱断面積 ($d^2\sigma/(d\Omega d\omega)$) は、簡単

に、 $d^2\sigma/(d\Omega d\omega) = k_1/k_0(1.91e/c)(N/2\pi) \int dt e^{-i\omega t} \langle S_{\perp}(\mathbf{Q},0) \cdot S_{\perp}(-\mathbf{Q},t) \rangle$ で与えられる。ここで、 \mathbf{Q} は散乱ベクトルとも呼ばれ、 $S_{\perp}(\mathbf{Q})$ は原子の磁気モーメントの散乱ベクトルに垂直な成分のフーリエ変換である。また、 $d^2\sigma/(d\Omega d\omega)$ は $\Sigma \int dt e^{i(\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r} - \omega t)} \langle S_{0\perp}(\mathbf{Q},0) \cdot S_{0\perp}(\mathbf{Q},t) \rangle$ に比例するので、中性子散乱は、スピン相関関数 $\langle S_0(0) \cdot S_0(t) \rangle$ の時空フーリエ変換を直接測定することになる。また、磁性体に任意の波長をもちかつ任意の周波数をもつ磁場を与えたときの応答関数である帯磁率（；一般化帯磁率）は、相関関数に比例する。このことから、中性子散乱は磁性体の外場に対する応答を全波数及びエネルギー空間で測定できる唯一の実験手段とみなすこともできる。

3. ランダム磁性体の臨界現象とスピン波

磁性体の相転移現象と磁気励起（スピン波等）は、中性子散乱がその理解に対して最も重要な寄与をしてきた研究分野である。磁気相転移（臨界現象）の研究は物性物理の中心課題の一つとして1970年台まで、理論的にも実験面でも活発に研究されてきた。2次相転移点近傍での物理量の発散現象を特徴づける臨界指数の精密測定から、“スケールリング”と“普遍性”の新しい概念が生まれ、格子次元とスピンの対称性のみによって臨界現象がクラスわけでき、かつ、系を記述するハミルトニアンの詳細には依らないことが明らかとなった。繰り込み群論による研究によってこの方面の多くの課題が解かれたが、この研究の過程またその後の研究で、多くの1次元及び2次元磁性体が見い出され（例えば2次元イジングモデル物質の発見）、2次元XYモデルのKosteritz-Thouless転移の研究、4次元と等価な磁性体の発見、1次元 $S=1/2$ 量子反強磁性体の連続帯磁気励起の観測、1次元磁性体における非線型励起(ソリトン)の観測、3角格子反強磁性体のフラストレーション効果、1次元 $S=1$ 量子反強磁性体のハルデンギャップ、など現在でもこの方面の研究が活発に展開されている。

これらの研究と相前後して、磁性原子が周期性をもたないランダム系における新しい現象を探索する方向の研究が進展した。特に局在電子系では、スピン間の相互作用が最近接原子間に限られることが多く、ハミルトニアンが比較的シンプルに書けるため、統計物理のモデルとして格好の素材を与えるのみならず、乱れの効果の本質を実験的にも抽出できるものと考えられているからである。

臨界現象はランダム系（特に非磁性イオンで希釈した系）では純粋系と異なるかどうか、という素朴な問題が1974年にHarrisによって議論されている。純粋系の比熱の臨界指数が正であれば（例えば3次元イジング系）、その格子を乱したとき臨

界現象が純粋系と異なってくるというconjectureが示されたが、この方面の実験研究によって、濃度揺らぎの少ない良質な試料を合成する技術も進んだ。

希釈磁性体および2種の異なる磁性原子が混合した磁性体におけるスピン波の観測も数多く行なわれ、CPA理論との比較、また、グリーン関数の時間発展を直接計算機で追いかけることによって散乱関数を計算する手法も発展した。特に希釈あるいは混合型反強磁性体のゾーンバウンダリーでの磁気励起が、明瞭なイジングクラスター励起で説明出来ることが自明となったが、講義ではいくつかの実験例とその解釈を示す。

4. ランダム磁場効果

磁性体の個々のスピンのサイトに大きさが及び向き異なるランダムな外部磁場をかけることが出来たと想定する。イジング型強磁性体にランダム磁場をかけると、格子次元 (d) が $d < 2$ のとき、低温での長距離秩序は消失し、マイクロなサイズからなるドメイン状態に移行すと主張したのが Imry と Ma (1975) である。つまり、 $d < 2$ のイジング磁性体はランダム磁場下では有限温度で相転移を生じない (つまり、下部臨界次元 d_l は 2)。ドメインをつくることによる交換エネルギーの損とゼーマンエネルギーの得のバランスに基づくこの議論の結果は、1次元イジング磁性体の相転移温度が絶対零度であることを考慮すると、ランダム磁場をかけることによって系の次元を1だけ低下させることに相当する。また、同様の議論によって、ランダム磁場下のハイゼンベルグ磁性体の d_l は 3 (ランダム磁場の無いハイゼンベルグ磁性体の d_l は 2 であるから、この場合も1だけ次元の低下が起こる) であることを示した。その直後の ϵ -展開による理論は、次元の低下が2であることを主張し Imry と Ma と異なっている。この問題は、次元の低下という新しい概念が物性物理に登場した最初の例であり、次元の低下が1であるか2であるかについての論争が、この後10年以上続くことになる。

秩序変数に共役な外場としてランダムな磁場はどのようにすれば発生させることができるかという問題を解いたのは Fishman と Aharony (1979) である。彼等は、希釈反強磁性体のスピン容易軸方向に静磁場をかけると、磁場によって誘起された局所的なスピンの伸び (あるいは縮み) が、希釈によってランダムに分布した交換相互作用のパスの数の違いを通じて、局所的なスピんにランダムな交換磁場を発生させることができることを提案した。

この理論に刺激され、実験が開始され興味深い結果が、中性子散乱実験、比熱測定、磁化測定等で示された。

希釈イジング型 2次元反強磁性体 ($\text{Rb}_2\text{Co/MgF}_4$) が最初の実験例であるが、系が 2次元であるため、次元の低下が 1 であろうと 2 であろうとランダム磁場効果によって低温での長距離秩序は消失することになる。静磁場下での中性子散乱実験は、(1) 零磁場中での磁気弾性散乱 (ブラッグ散乱) が運動量空間でデルタ関数であるのに対し、磁場中ではその幅が増大し (幅の逆数がスピンの相関距離あるいはドメインサイズを与える)、長距離秩序がランダム磁場効果によって破壊されたこと、(2) ドメインサイズは磁場のほぼ 2 乗に比例して減少すること、(3) 散乱関数が Squared Lorentzian (LSQ) 型であること、(4) (H, T) を同じ値の条件で散乱を測定しても、試料を磁場中冷却した (FC) かあるいは零磁場冷却した後に磁場をかけた (ZFC) かによって、まったく異なる散乱が得られること、などを示した。一方、零磁場中比熱のネール温度での対称型 log 発散は、磁場の増大とともに鈍化する。また、極弱磁場下での平行磁化率は (系が反強磁性体であるにも拘わらず) ネール温度で発散し、この発散は磁場の増大と共に鈍化する。また、磁化にヒステレシスが現われる。

これら一連の実験は、2次元系の相転移がランダム磁場効果によって破壊されたことを示している。この当時は、わずかに非磁性原子を含んだ希釈反強磁性体に静磁場をかけても反強磁性相からスピントロップ相を経て常磁性相にいたる通常の磁気転移は保存される、というのが常識であったことを考えると、注目に値する研究例の一つである。

その後、問題の核心である 3次元イジング系の実験が精力的に進められた。3次元系にランダム磁場をかけたとき、相転移が消失すれば次元の低下は 2 となるが、相転移が 2次元のそれになれば次元の低下は 1 となり、2つの異なった主張のどちらが正しいのかについての結論が下せる筈である。実験は、 Mn/ZnF_2 , Co/ZnF_2 , Fe/ZnF_2 , Fe/MgCl_2 等多くの試料について行われた。このような明快な問題は典型物質 1 個について解けば通常では事足りるわけであるが、FCあるいはZFCで測定される状態が異なっていて、どちらが平衡状態にあるかを判断することが極めて困難であったという事情による。詳細については、講義で述べるが、ランダム磁場による次元の低下は 1 であることで現在決着をみている。

5. パーコレーションとフラクタル

マンデルブロの発見以来、自然界には非常に多くのフラクタルが存在することが確認されている。一見してあいまいな乱れた構造に見えるものであっても、その構造に自己相似性があり、空間相関関数がべき関数という単純な関数で表せるものが多数発見されている。我々の身近なところでも、リアス式海岸の海岸線、雲の輪郭、雷光

の形、バクテリアの増殖過程のパターン、多孔性固体、臨界点におけるゆらぎのパターン等枚挙にいとまがない。このような系に外部からわずかな擾乱（力、電磁波、中性子、等）を与えてその系のレスポンスを調べることによって内部のミクロな状態を知る、という物性物理本来の研究手法が適用できる最も理想的なフラクタルはパーコレーション磁性体である。磁性体を非磁性原子で希釈していくと、ある有限の磁性原子濃度（パーコレーション濃度）で相転移温度は0Kになる。このときの磁性原子の結合の形態（正しくは、無限クラスター内の形態）はフラクタル構造の典型である。しかも、この構造の上に原子スピンの乗っているのであるから、その磁性原子の振舞い、とくにダイナミクスは中性子磁気散乱によって直接観測することが可能であって、これら非整数次元をもつ新しい物質に内在する（であろう）新しい現象の探索を行なう努力がなされている。

講義では、パーコレーション磁性体のもつフラクタル構造とその直接観測、パーコレーションクラスターが時間的に成長していく過程の実時間観測、フラクタル構造固有の新しい励起といわれるフラクトン励起の観測、フラクタル構造上を拡散する粒子が従う異常拡散現象の観測、について、中性子散乱実験を中心にして説明することにした。

以上の話題以外に、ランダム磁性体の研究として、スピングラス転移、オブリーク相の発見、等重要な課題も多く、若い人がこの分野の研究に積極的に関わっていかれることを望んでいる。