

## References

- 1) G.J.Coombs and R.A.Cowley : J.Phys. C: Solid state Phys. 6 (1973) 121 ; R.A.Cowley and G.J.Coombs ibid. 142
- 2) M.P.Schulhof et al. : Phys. Rev. B4 (1971) 2254
- 3) J.D.Axe and G.Shirane : Phys. Rev. B8 (1973) 1965
- 4) I.Hatta, M.Matsuda and S.Sawada : to be published in J.Phys. C: Solid State Phys. 7 (1974)
- 5) M.Matsuda, I.Hatta and S.Sawada : to be published in Ferroelectrics 7 (1974)
- 6) F.Schwabl : Phys. Rev. B7 (1973) 2038
- 7) R.Silbergritt : Solid state Commun. 11 (1972) 247
- 8) F.Schwabl : Solid state Commun. 13 (1973) 181
- 9) T.Schneider and E.Stoll : Phys. Rev. Letters 31 (1973) 1254

## 強磁性体 $K_2 Cu F_4$ のキュリー一点近傍における線型非線型高周波帯磁率の研究

東工大 橋本巍洲

### 1) $K_2 Cu F_4$ の線型高周波帯磁率の研究

近年、臨界点近傍でのスピン系の動的振舞に関する実験的研究の一つとして、強誘電体における高周波誘電率の研究が盛んに行われた。これらは、誘電率の周波数依存性の測定より双極子モーメントの緩和時間を求め、キュリー点 ( $T_c$ ) 近傍におけるモーメントの振舞を実験的に明らかにしようとするものである。これらの研究では、かなりの数の精緻な結果が得られており、非常に複雑な機構によると考えられるものを除くと、分散は簡単な模型で説明され、特にそのキュリー一点近傍での双極子の動的振舞は、Ising

スピンの模型を使用して計算された結果で非常に良く説明されているようである。<sup>1)</sup>

一方磁性体においては、この種の実験的研究は殆んどなされておらず、われわれの YIG (Yttrium Iron Garnet) についての結果<sup>2), 3)</sup>が一例あるのみである。YIG

の高周波帯磁率の虚部の周波数

依存性を 1 図に示す。この結果

より明らかなように、分散過程

は多分散があり、 $T_c$  近くでの

緩和時間は  $\sim 0.8 \times 10^{-8}$  sec

である。また、西川<sup>4)</sup>等によ

ると、非線型項が存在する場合、

分散過程が多分散的になること

が示されているが、われわれの

観測でも、2 次および 3 次の非

線型項の  $T_c$  近傍での異常増大

が観測された。しかし、このよ

うに得られた結果は通常の強誘

電体の結果とは著しい相違があ

り、また、これらは現在迄理論的説明が与えられない。さらには、この種の実験が殆ん

どないことともあいまって、この YIG の結果が特例なのか否かも決定できない状態

である。それゆえ  $K_2CuF_4$  の高周波帯磁率の研究が計画されたのである。 $K_2CuF_4$  は

$K_2NiF_4$  型構造であるが<sup>5)</sup> 磁性は非常に異なる。 $K_2CuF_4$  は近似的に 2 次元強磁性体

( $S=\frac{1}{2}$ ) であり、c 面内の交換相互作用  $J/k$  は  $\sim 10.0$  K、面間の交換相互作用は、

0.024 K である。このような異方的交換相互作用より磁気異方性は出現し、モーメント

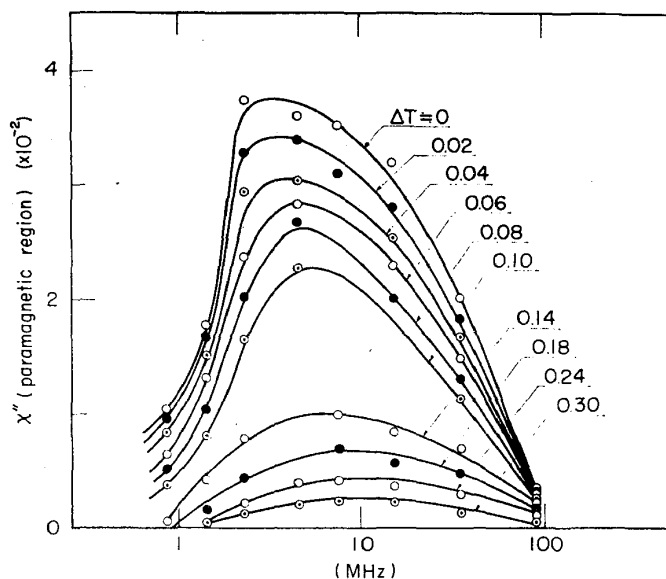
は c 面内にあり、c 軸方向に動かすには 2800 ガウスの磁場を必要とする。<sup>6)</sup> 一方、面

内での異方性は非常に少なく、～数ガウス程度である。

Casimir<sup>7)</sup> 等によると、常磁性領域の高周波帯磁率は、単分散を仮定すると

$$\chi^*(\omega) = \chi'(\omega) + i \chi''(\omega) \quad (1)$$

$$\chi'(\omega) = \chi_\infty + (\chi_s - \chi_\infty) \cdot \frac{1}{1 + \omega^2 \tau^2} \quad (2)$$



第 1 図 YIG における高周波帯磁率の虚部の周波数依存性

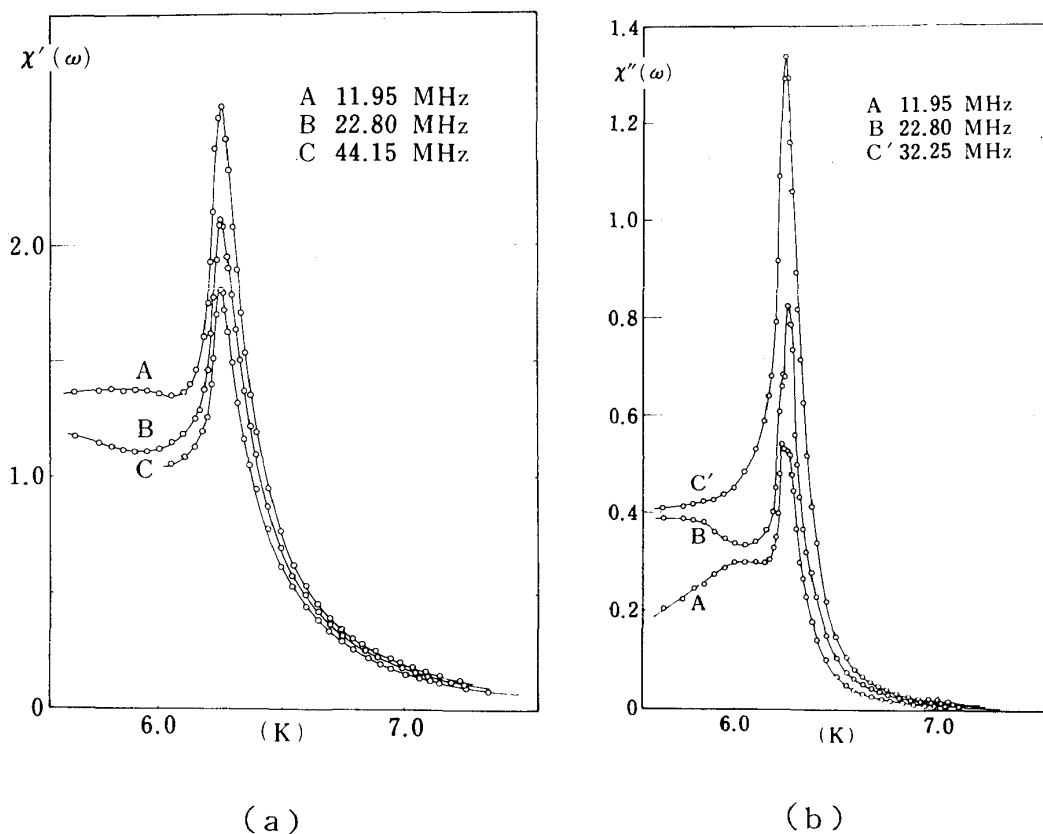
および

$$\chi''(\omega) = (\chi_s - \chi_\infty) \cdot \frac{1}{1 + \omega^2 \tau^2}, \quad (3)$$

ここで  $\chi_\infty$  および  $\chi_s$  は断熱および等温帯磁率である。

試料は物性研平川研究室で作製された多結晶を使用した。高周波帯磁率は、試料コイル中に試料を入れた場合のインピーダンス変化を、ブリッジ法を用いて測定し、高周波帯磁率は算出された。試料は円種状のものを使用したので反磁場の補正を施さねばならない。われわれは試料の充てん率  $\eta$  を充分小さくとり、 $\chi'$  および  $\chi''$  は次式を使用して計算した。

$$z' - i z'' = \frac{4\pi\chi^*(\omega)\eta}{1 + N\chi^*(\omega)} \quad (4)$$



第2図  $K_2CuF_4$  における高周波帯磁率の実部 (a) および虚部 (b) の温度依存性

ここで  $z'$  および  $z''$  は、試料をコイルに入れた際のインピーダンスの変化分の実部および虚部であり、 $N$  は反磁場係数である。測定は 5.5 K より 7.5 K の温度範囲で、また測定に用いられた周波数範囲は 3 MHz より  $\sim 60$  MHz である。2 (a) および 2 (b) 図に、11.95 MHz、22.80 MHz および 32.25 MHz で得られた  $\chi'$  および  $\chi''$  の温度依存性の結果を例示する。 $\chi'$  および  $\chi''$  の温度依存曲線中には鋭いピークが  $T_c$  近くに現れる。この結果を (2), (3) 式を使って解析する。今 (2) 式において  $\chi_\infty = 0$  とおいて  $\chi''/\chi'$  を作ると、

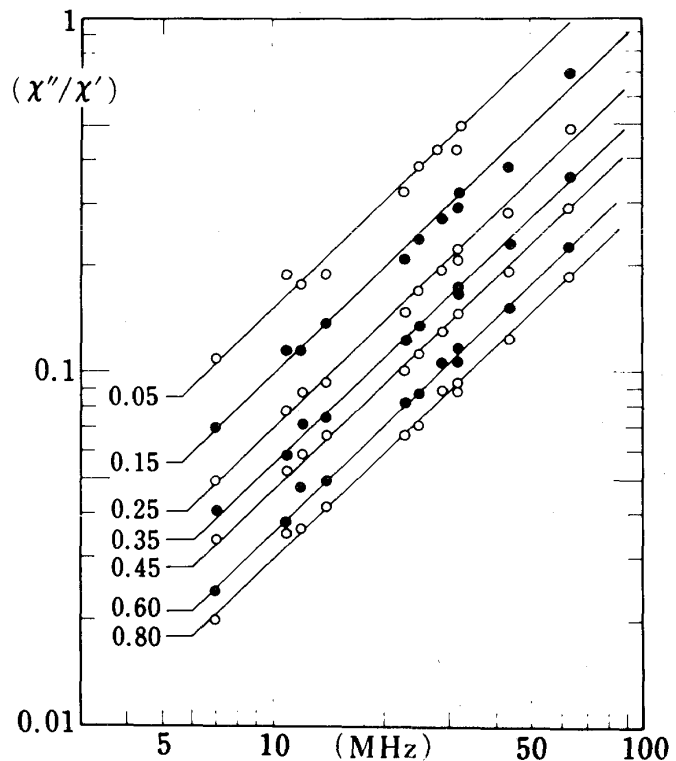
$$\chi''/\chi' = \omega \tau \quad (5)$$

となり、両辺の対数をとると

$$\log (\chi''/\chi') = \log \omega + \log \tau \quad (6)$$

となる。したがって、 $\chi''/\chi'$  と  $\omega$  の両対数プロットを行うと、そのせっ片より緩和時間  $\tau$  を求めることができる。3 図に  $(\chi''/\chi')$  と  $\omega$  の両対数プロットおよび、実験値に一番合うように決められた (6) 式の計算曲線を示す。

$T - T_c > \sim 0.05$  の領域では (2) および (3) 式で  $\chi_\infty = 0$  とおいた単分散近似が非常に良く合うようである。今われわれは常磁性領域でのスピン緩和のみを考える。強磁性領域では、例えば磁壁の運動の影響等が加わるが、現在の測定の周波数範囲では狭すぎて十分な解析ができないので行わない。3 図より求められた緩和時間  $\tau$  の  $\Delta T$  ( $= T - T_c$ ) 依存性を 4 図に示す。 $\Delta T$  が 0 に近づくに従っ

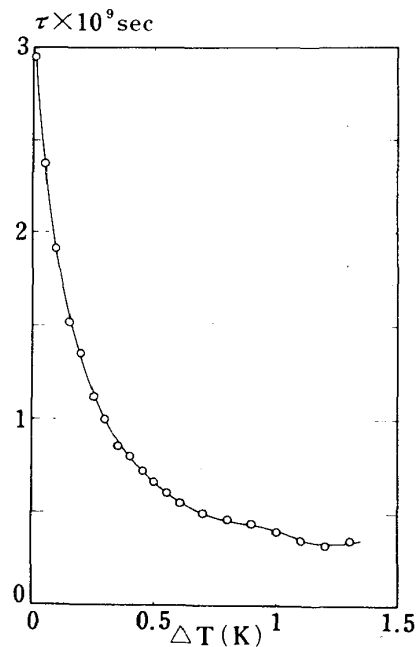


第3図  $\log(\chi''/\chi')$  対  $\log \omega$ , 図中の数字は  $\Delta T (= T - T_c)$  を示す。

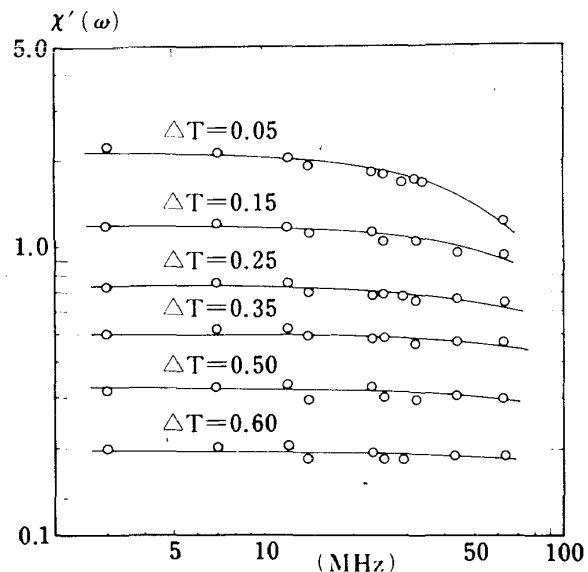
て緩和時間は異常に増大する現象、  
 …… これは強誘電体では観測されていることであるが…… いわゆる  
 critical slowing down が観測されている。この緩和時間を用いると、 $\chi'$  の周波数依存性は計算可能であり、その結果を第5図に示す。図中の○および●は実験値である。

3, 7 および  $\sim 10$  MHz の  $\chi'$  の値より  $\chi_0$  を決め、この  $\chi_0$  と4図に示してある  $\tau$  の値とを(2)式に代入して、計算された結果が実線であり、非常に良く一致している。6図に常磁性領域の  $K_2C_uF_4$  中のスピンの緩和時間と  $\{(T-T_c)/T_c\}$  の両対数プロットを示す。臨界領域のはずれに近い  $\{(T-T_c)/T_c\} = 0.1$  の近くでは、 $\tau = 1$  であり、 $T_c$  に近づくに従いこれよりずれる傾向を示しており、特に  $T_c$  のごく近傍では緩和時間は殆んど  $T$  に依存しなくなる。

結論として、 $K_2C_uF_4$  中のスピンの緩和過程は YIG の場合と異り、単分散であると考えて良いようである。Mason<sup>8)</sup> や松原<sup>9)</sup> 等の計算結果等によると単分散の場合、 $\epsilon'$  の温度依存性曲線に  $T_c$  近くで2つのピー

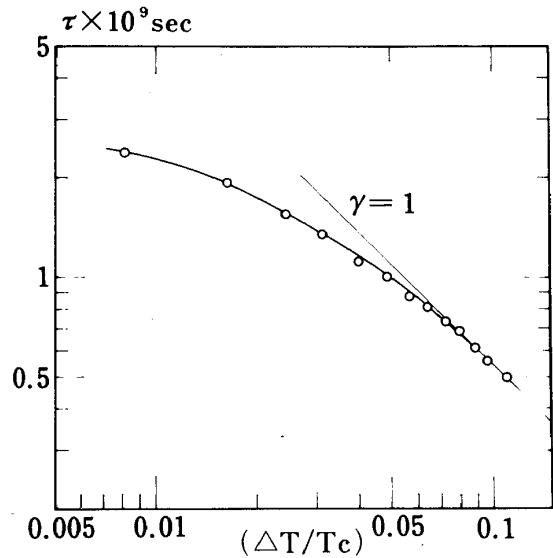


第4図  $K_2C_uF_4$  の常磁性領域におけるスピンの緩和時間の  $\Delta T$  依存性



第5図 高周波帯磁率の実部の周波数依存性

ークがであることを導いているが、上記の結論は、 $\epsilon_0$  および  $\tau$  が  $(T-T_c)^{-1}$  の形で温度依存するとしているところから導かれたものである。われわれの場合、 $\chi_0$  の  $r$  は 1.36 であり、 $\tau$  の  $r$  は  $T_c$  近くでは  $\sim 0.5$  位であるから、 $\chi'$  が  $T_c$  で極少にはならず、2つのピークが現れなかったのであろう。緩和時間の  $\left\{\frac{T-T_c}{T_c}\right\}$  に対する依存性は6図に示すようになるが、これを完全に説明するような理論的モデルが見当らず、現在われわれのグループで適当なモデルを検討中である。



第6図 緩和時間と  $(\Delta T/T_c)$  の両対数プロット

## II) 非線型高周波帯磁率の研究

$K_2CuF_4$  の非線型項については充分信頼できる結果はまだ得られていないので、ここでは YIG の非線型高周波帯磁率について述べる。非線型項は Landau<sup>10)</sup> の古典論より次のような温度依存が導かれる。今磁気モーメントが次式のような磁場のべき級数に展開されるとする。

$$\begin{aligned}
 M &= M_{H=0} + \left(\frac{\partial M}{\partial H}\right)_{H=0} H + \frac{1}{2!} \left(\frac{\partial^2 M}{\partial H^2}\right)_{H=0} H^2 + \frac{1}{3!} \left(\frac{\partial^3 M}{\partial H^3}\right)_{H=0} H^3 + \dots \\
 &= M_0 + \alpha_1 H + \alpha_2 H^2 + \alpha_3 H^3 + \dots
 \end{aligned} \quad (7)$$

一方、Landau によると磁気エネルギーは

$$F = F_0 + \frac{1}{2} \eta M^2 + \frac{1}{4} \xi M^4 + \frac{1}{6} \zeta M^6 + \dots \quad (8)$$

(8) を微分して

$$H = \left(\frac{\partial F}{\partial M}\right) = \eta M + \xi M^3 + \zeta M^5 + \dots \quad (9)$$

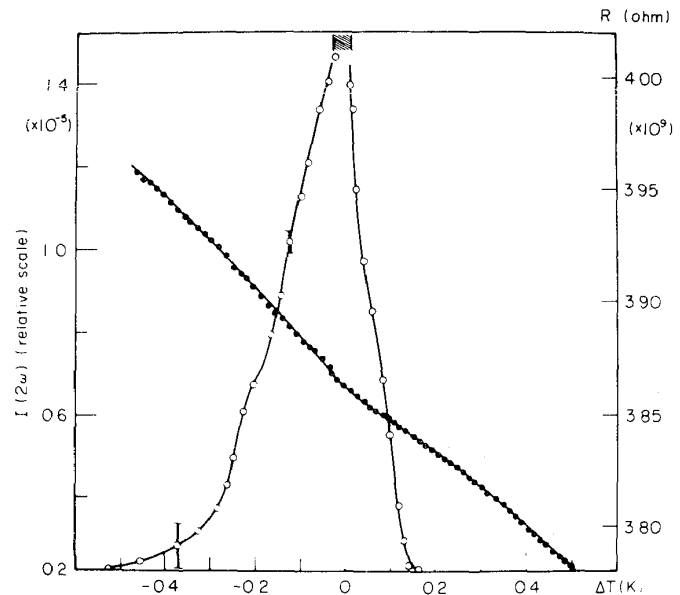
従って (7) と (9) より (7) 式中の係数  $\alpha_1$ ,  $\alpha_2$  および  $\alpha_3$  は, つぎのように決定される。

$$\begin{aligned}\alpha_1 &= \left( \frac{\partial M}{\partial H} \right)_{H=0} = 1 / (\eta + 3 \xi M_0^2 + 5 \zeta M_0^4), \\ 2\alpha_2 &= \left( \frac{\partial^2 M}{\partial H^2} \right)_{H=0} = -2 (3 \xi M_0 + 10 \zeta M_0^3) / (\eta + 3 \xi M_0^2 + 5 \zeta M_0^4)^3, \\ 6\alpha_3 &= \left( \frac{\partial^3 M}{\partial H^3} \right)_{H=0} = - \frac{6 (3 + 10 \zeta M_0^2)}{(\eta + 3 \xi M_0^2 + 5 \zeta M_0^4)^4} \\ &\quad + \frac{12 (3 \xi M_0 + 10 \zeta M_0^3)^2}{(\eta + 3 \xi M_0^2 + 5 \zeta M_0^4)^5} .\end{aligned}\tag{10}$$

従って  $\alpha_2$  は (10) 式より常時性領域では 0, 強磁性領域ではキュリー一点に近づくにつれて急激に増加する。 $\alpha_3$  は, キュリー一点に近づくに両領域で増大する。(常磁性領域の  $\alpha_3$  を  $\beta_1$  とおく。)

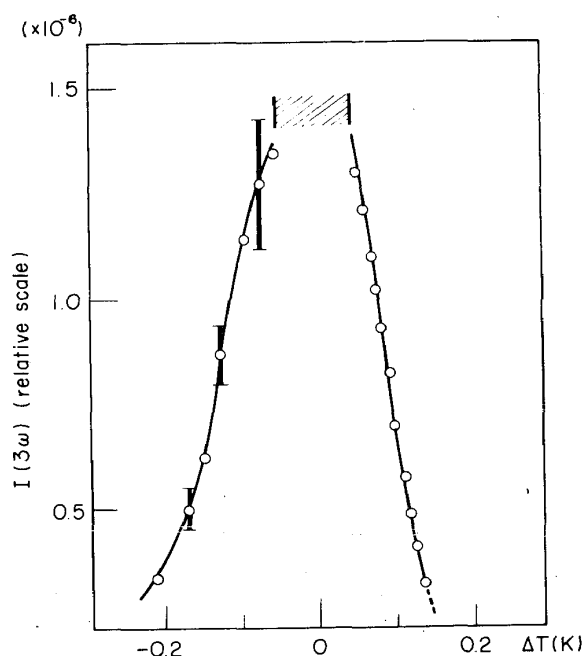
測定は, 試料コイルに  $\omega_0$  の高周波を加え, 試料コイル中に誘起された  $2\omega_0$  および  $3\omega_0$  の信号を取り出すという方法を用いている。7 図に  $2\omega_0$  の信号の強度および電気抵抗の温度依存性を示す。後者の同時測定を行なったのは,  $T_c$  を正確に決定するためである。8 図に  $3\omega_0$  の信号強度を示す。これらより  $\alpha_2$  および  $\beta_1$  を決定した結果を 9 図に示す。

常磁性領域での 3 次の項,

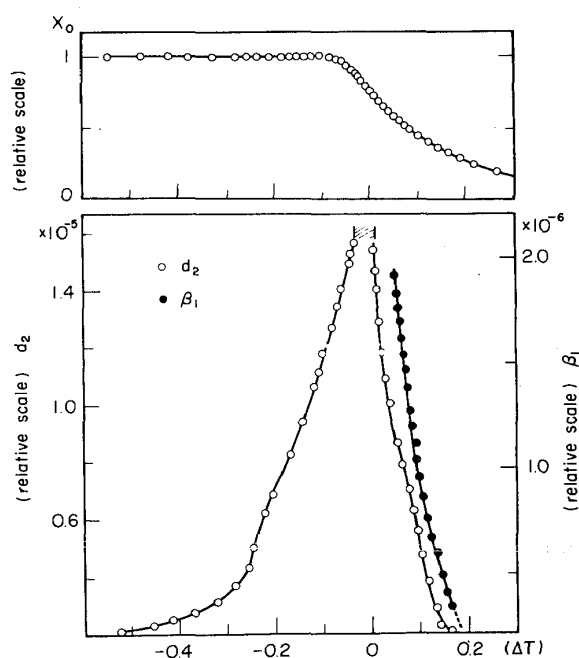


第 7 図 2 次の高周波の信号強度の温度依存性

$\beta_1$  の臨界指数は  $r = 3.8 \pm 0.3$  と求められたが、これは分子場近似を用いて導かれる  $r = 4$  と良く一致している。強磁性領域での  $\alpha_2$  に関しても同様である。しかしながら特に興味を引くことは、2次の項がキュリー点以上でも残ることである。 その理由として；(1) 試料の不均一によるものか。(2)  $T > T_c$  で  $\alpha_2 = 0$  導かれる(10)式は、完全な熱平衡系での熱力学より導出されたものであり、この測定のように分散周波数近傍で、(10)式のような関係式が成立するのであろうか等考えられるが、現在その理由は明確にされていない。



第8図 3次の高周波の信号強度  
の温度依存性



第9図  $\chi_0$ ,  $\alpha_2$  および  $\beta_1$  の  $T_c$   
近傍での温度依存性

## References

### 1) 例えば

M. Suzuki and R. Kubo; J. Phys. Soc. Japan 24 (1968) 51;

H. Yahata and M. Suzuki; J. Phys. Soc. Japan 27 (1969)

1421



- 2) T.Hashimoto and I.Ichitsubo; J.Phys. Soc. Japan 33 (1972) 1341
- 3) T.Hashimoto, A.Sato and Y.Fugiwara; J.Phys. Soc. Japan 35 (1973) 81
- 4) K.Nishikawa; Progr. Theor. Phys. 38 (1967) 305
- 5) I.Yamada; J.Phys. Soc. Japan 28 (1970) 1585
- 6) I.Yamada; J.Phys. Soc. Japan 33 (1972) 979
- 7) H.B.G.Casimir and F.J.Du Pré; Physica 5 (1938) 507
- 8) P.W.Mason; Phys. Rev. 72 (1947) 854
- 9) T.Matsubara and K.Yoshimitsu; Progr. Theor. Phys. 37 (1967) 634
- 10) L.D.Landau and E.M.Lifshitz; Statistical Physics (Addition Wesley Reading, Massathusetts, 1958)

## 「 $\lambda$ 転移点に於ける密度のゆらぎ」

東大理 田 中 文 彦

静的臨界現象においてはユニヴァーサリティ (普遍性) の概念はほぼ確立されている。即ち臨界指数は対象となる系の詳細な構造には依存せず、次元  $d$  , 内部対称性  $n$  , 相互作用距離  $\sigma$  等の基本的なパラメータのみにより決まるというのである。これに対して相転移の動的特性は系のやや詳細な構造に依存することが、特に秩序パラメータ ( $O, P, \dots$ ) とエネルギー密度の保存則に関連して、くり込み群の方法で詳細に調べられてきた。<sup>1)</sup> 同じ静的ユニヴァーサリティクラスに属する系から出発しても、ダイナミックスの入り方は一意的でないのである。ここでは、近距離相互作用 ( $\sigma=2$ ) をする  $m$  成分 ( $n=2m$ ) のボーズ粒子系<sup>2)</sup> :