

1 次元秩序形成とスピン相関関数

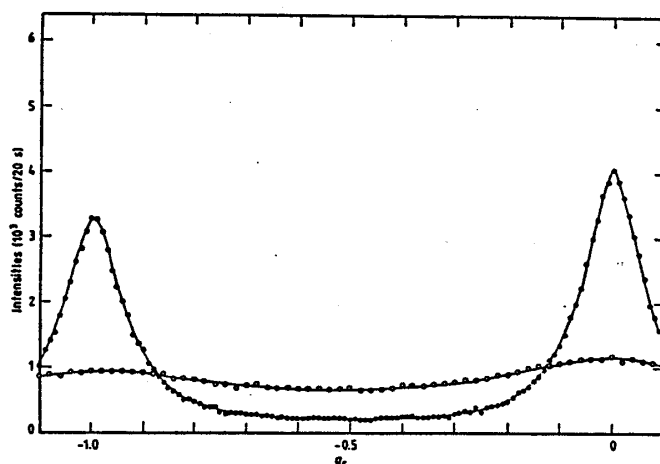
お茶の水大理

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じりまって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示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、ならびに結果の解釈、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で結合し、面間のスピン間相互作用はそれと比べて 10^{-5} 程度の小さな値しかもたないと思われている。もちろん、この小ささがしかし有限の値のため、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のため長距離にわたって秩序を示すが、C面間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によって明らかである。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は常に存在する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、この磁気ブラッグ根は時間的に変化し、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。

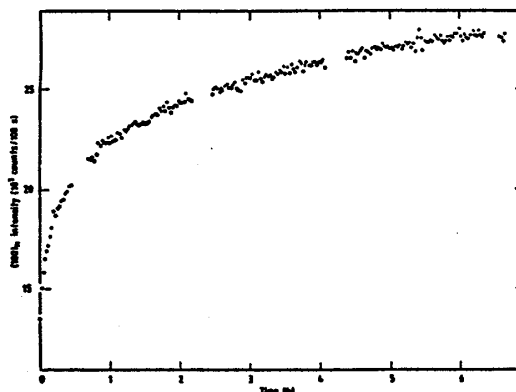
温度急冷後にC面無秩序状態ができることは、Ising 反強磁性体 Rb_2CoF_4 、Heisenberg 反強磁性体 Rb_2NiF_4 およびそれらの混晶また希釈系全体にわたって確認される。しかし、3次元秩序へ向う緩和の原動力がいわゆる臨界熱揺動であることを見極めたうえで、上記の希釈 Ising 反強磁性体 $\text{Rb}_2\text{Co}_{0.7}\text{Mg}_{0.3}\text{F}_4$ を実験試料として選んだ。 Rb_2CoF_4 ($T_N = 10.3 \text{ K}$) または K_2CoF_4 の磁気的諸特性はすでに詳しく調べられ、その臨界現象は2次元 Ising モデルの厳密解と一致することを確認、またスピニングイナミクス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 ($T = 5 \text{ K}$). 白丸, 黒丸 データはそれぞれ試料急冷後, 徐冷後をみる。 $\text{Rb}_2\text{Co}_{0.7}\text{Mg}_{0.3}\text{F}_4$ 。

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 $\text{Rb}_2\text{CoMg}_{1-x}\text{F}_4$ の諸特性も明らかにされているが²⁾、ここで使用した $\text{Rb}_2\text{Co}_{0.7}\text{Mg}_{0.3}\text{F}_4$ はネール温度 42.8 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割合大中に減少し、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 $\text{Rb}_2\text{Co}_{0.7}\text{Mg}_{0.3}\text{F}_4$ 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 まで急冷して層間無秩序状態をつく。たのち温度をネール点近く (41.819 K) まで数10秒の間に一気に上げた後の、(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、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

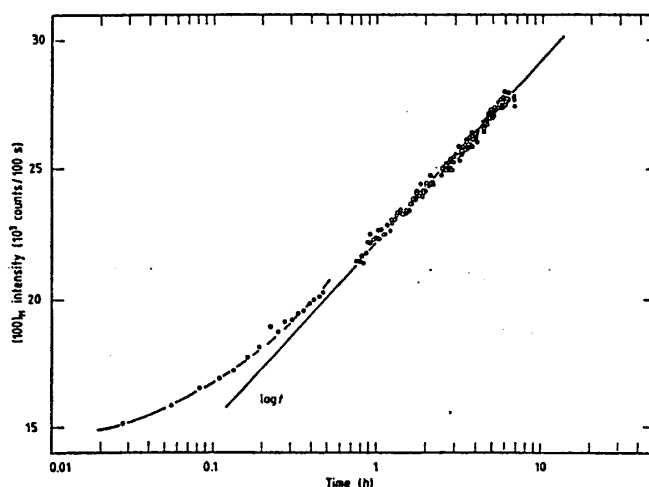


第2図. $\text{Rb}_2\text{Co}_{0.7}\text{Mg}_{0.3}\text{F}_4$ の (100) 散乱強度の時間変化. $T = 41.819 \text{ K}$.

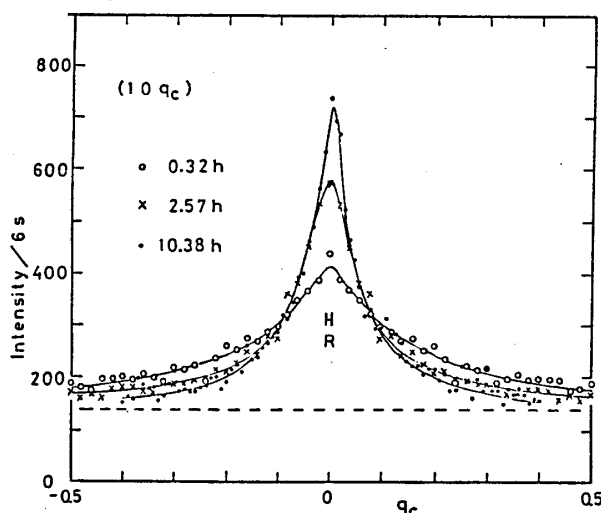
に第2図と同じ (100) 強度を片対数プロットしたものを第3図に示した。強度は秩序形成の初期の段階をすぎると $\log t$ に依存して増大することが分る。またさらに、磁区の大さきの時間変化も直接知るために各時刻で q_c 方向の散乱強度を測定した。秩序形成をはい

めこから約10時間に及ぶまで、計33個の異なる時刻で測定を行った。散乱関数の測定例を第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ヒレンシーが増大することが見てとれる。半値幅の逆数は c 軸方向に結合した面の枚数(磁区サイズ)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 $\log t$ 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層に相肉が及ぶまでは $\log t$ 則が成立していることを示す。つぎに、散乱関数をスケール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幅(q_m)で規格化したものである。これから分るように、全てのデータが一つの曲線上にのっており、スケールング則がこの秩序形成に対して成立することが見てとれる。散乱関数は $I(q) S(q_c/q_m(t))$ ($n=2$, $q_m(t)^{-1} \propto I(t)$, $I(t)$ は磁区サイズで $I(t) \propto \log t$) で表わされる。しかし、第6図に示すように、関数 $S(k)$ 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のところ得られていない。

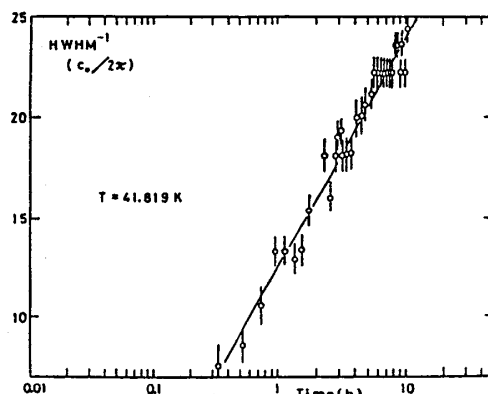
ここで緩和時間の温度依存性について一言ふれておく。測定温度をネール温度に近づけるにつれて緩和は早くなり、かつ時間変化は第2図に示した例と全く同一の関数で記述できる。時刻を臨界揺ぎ χ_s (スタガード帯磁率)の逆数でスケールすると、異なる温度でのデータが全て一定の関数になることから、層のくり返し反転にともなう秩序形成は熱揺ぎと密接な関係にある。



第3図. 第2図のデータを片対数プロットしたもの。



第4図. $(10 q_c)$ 方向の散乱関数を3つの異なる時刻で測定したもの。Rは分解能を示す。

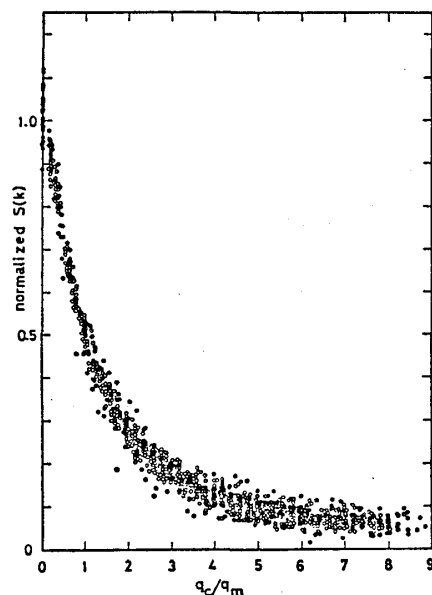


第5図. $(10 q_c)$ スキャンの半値幅の時間依存性。直線は磁区サイズが $\log t$ に従って増大することを示す。

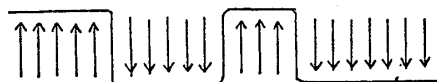
ことが分る。

以上述べてきた実験は、熱振りの大まき系における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、層間の磁区の時間的成長が測定されたことになる。相転移における秩序形成の統計力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型項をとり入れた理論が強く要望される。この非線型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捉えられることを示した。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帰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(磁区の大まきさ)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屏結として磁区の成長は $\log t$ 依存性をもつことを示しており、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、先にも述べたとうり、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、今後実験的に確かめなければならぬ点も残されている。



第6図. 散乱関数のスケリングプロット。



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。

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.