

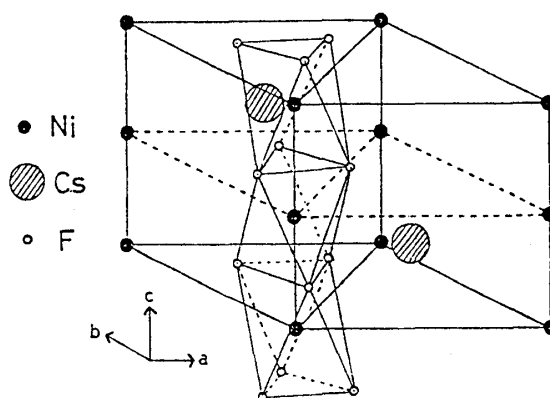
- 4) C. N. Yang and C. P. Yang J. Math. Phys. 10 (1969), 1115.
- 5) M. Takahashi and M. Suzuki Prog. Theor. Phys. 48 (1972), 2187.

核磁気緩和による磁氣的ソリトンの検証

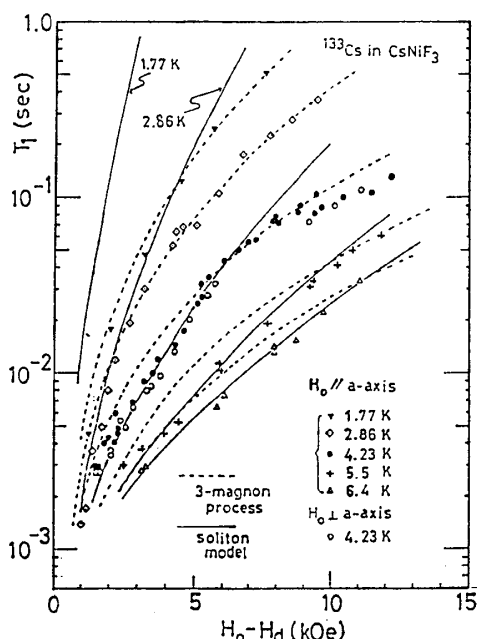
京大・教養 後 藤 喬 雄

物性に現われる非線形素励起の1つとして、1次元磁性体のソリトンが注目を集めている。研究の対象となっているのは、容易面型強磁性体及び同反強磁性体中の Sine-Gordon型ソリトンと Ising 型反強磁性体中の磁壁の伝播の三種類で、それぞれ、 CsNiF_3 , TMMC, CsCoCl_3 で中性子散乱を用いて観測されている¹⁾。ここでは、特に、その解釈をめぐって議論のある CsNiF_3 のソリトンを取り上げ、この問題に対する異った観点からのアプローチとして、核磁気緩和を利用した実験的検証を試みた²⁾。方法は、同塩中の ^{133}Cs の核スピン・格子緩和時間 T_1 の磁場依存性並びに温度依存性を詳細に調べ、これをソリトンモデルに基づく理論的予測と比較することである。

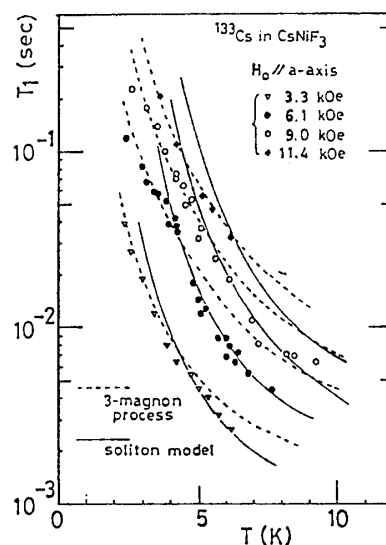
第1図に CsNiF_3 の結晶構造(単純六方晶系)を示す。各 Ni^{+2} イオンは、 c -軸に沿って伸びる1次元格子構造をとり、これが、 ab -面を容易面とする $S=1$ の強磁性1次元鎖 ($J/k=11.5\text{ K}$, $D/k=9.0\text{ K}$, $g=2.28$) となる。短距離秩序域 ($T > T_N = 2.6\text{ K}$) で容易面内に磁場をかけると、磁場方向へのスピンの配向が起こる。磁場が強い時は、スピン波が励起されるが、適当な強さ ($H_0 \lesssim (kT)^2 / JSg$

第1図 CsNiF_3 の結晶構造

μ_B) になると、ソリトンが現われる。 Cs^+ イオンは6個の最隣接 Ni^{+2} イオンの真中に配位し、従って、プローブとして選んだ ^{133}Cs 核は、これら6個のイオンからの等方的な transferred hyperfine interaction と同じイオンを含むまわりのイオンからの dipole interaction を受け



第2図 ^{133}Cs の T_1 の磁場依存性。横軸：有効磁場 $H'_0 = H_0 - H_d$ ，但し H_d は反磁場 (0.3~0.4 kOe)。点線と実線が 3-magnon process とソリトンモデルに基づく理論曲線。



第3図 ^{133}Cs の T_1 の温度依存性。

ている。

第2図及び第3図は、外部磁場を容易面内にかけた時の T_1 の実験結果である。次の様な特徴がある。(1) $T < 3\text{K}$ と $T > 5\text{K}$ での磁場依存性に定性的な相違が見られる。(2) いくつかの実験曲線 (例えば, $T = 4.23\text{K}$, $H_0 = 6.1\text{kOe}$) に、はっきりした折れ曲がりがある。これらの事実は低温・高磁場及び高温・低磁場の領域でそれぞれ異った緩和機構が支配的であることを示唆しており、ソリトンの影響が後者の領域に現われていることが予想される。

はじめに、スピン波の散乱による緩和機構について検討してみる。可能性としては 2-magnon process と 3-magnon process の2つがあるが、前者に比べて後者の寄与が大きいことがわかる。理由は、等方的な hyperfine interaction が有効であることと、2nd-order exchange-scattered process によるエンハンスメントが存在することである。事実、2-magnon process に対する T_1 の定性的振舞いは実験結果に全く一致しなかった。計算の詳細は省略するが、図中に点線で示したのが、既知の磁氣的諸定数を用い、エンハンスメント因子を適当に選んだ時の 3-magnon process についての数値計算の結果である。図から明らかな様に、低温・高磁場での実験と計算の一致は、定性的にも定量的にも満足すべきものである。しかし、高温・低磁場では、理論的予測からののはっきりしたずれがみられる。

次に、“希薄ソリトンガス”モデルに立って ^{133}Cs 核の緩和を考察する。1次元鎖を走るソ

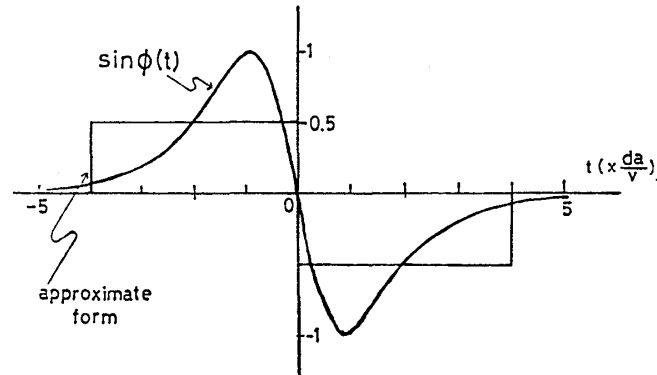
リトンは、電子スピンと核スピンとの相互作用を介して核スピンに摂動を及ぼす。これをソリトンと核スピンとの衝突とみなすと、ソリトンの通過は全くインコヒーレントであるから、この衝突による核スピンの緩和は、丁度非磁性原子の衝突に伴って起こる核スピンの緩和に類似していると言えよう。この点に着目し、その理論的概念³⁾を適用する。

簡単のため hyperfine interaction (カップリング定数を A とする) だけを考えると、衝突により生ずる摂動の内、核スピンの縦緩和に有効な横成分は、隣り合う 2 個のスピンからの寄与を考慮して、

$$\mathcal{H}_x = AS \left\{ \sin \phi(t) + \sin \phi\left(t + \frac{a}{v}\right) \right\} I_x \quad (1)$$

$$\phi(t) = 4 \tan^{-1} \exp\left(\frac{x - vt}{da}\right)$$

と表わすことが出来る。ここで、 $\phi(t)$ はソリトンの通過に伴って生じる電子スピンの回転角で、 a は格子間隔、 da はソリトンのサイズ、 v は速さである。 $\sin \phi(t)$ は第 4 図に示す様な



第 4 図 $\sin \phi(t)$ の時間変化 (太い実線) とこれに等価な近似 (細い実線)。

時間変化 ($x = 0$ で、 $\phi(t = 0) = \pi$ とする) を示す。これを、近似的に、有効時間間隔 $2\tau = 2 \times (4da/v)$ 、振幅 $\frac{1}{2}$ の等価なパルス (図中の細い実線) とみなすと、 τ 秒の間の核スピンの遷移の確率は $q \approx (AS/\hbar) \cdot \tau$ となり、1 回の衝突に対する遷移確率は、

$$\omega = 2q^2 \approx 4(1 - \cos q) \quad (q \ll 1) \quad (2)$$

と表わされる。緩和率は、 ω と単位時間当りの衝突回数の積で、

$$\frac{1}{T_1} = 2 n_s \cdot \int_0^\infty \omega \cdot f(v) v dv \quad (3)$$

と与えられる⁴⁾。ここで n_s はソリトンの密度、 $f(v)$ は速度分布関数で、因子 2 はソリトンとア

ソリトンの寄与を意味する。次の順序で上式を計算する。

- (1) $f(v)$ の Gauss 分布を次の矩形分布で近似する⁴⁾

$$f(v) \rightarrow \begin{cases} x^{-1} & (0 \leq v \leq x) \\ 0 & (v > x) \end{cases} \quad x = \sqrt{\frac{3kT}{M_s}}$$

- (2) n_s として、古典統計の結果を用いる。

$$n_s = \frac{1}{da} \left(\frac{2\varepsilon_s}{\pi kT} \right)^{\frac{1}{2}} \exp \left(-\frac{\varepsilon_s}{kT} \right)$$

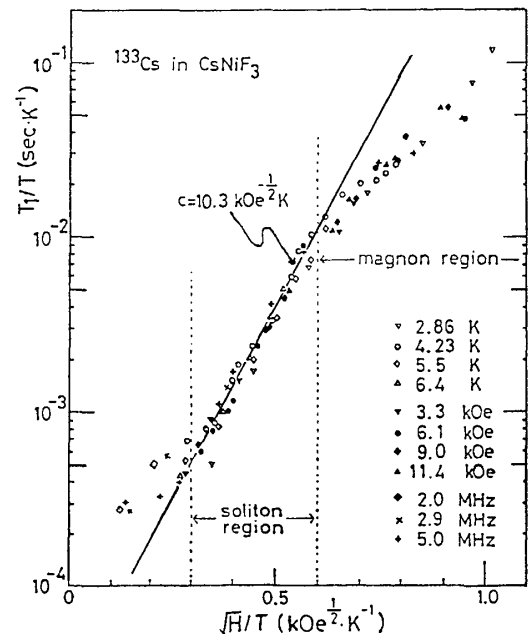
但し、 M_s は静止質量、 ε_s はエネルギーである。

(3) CsNiF_3 の exchange Hamiltonian の Sine-Gordon eq. へのマッピング。計算の過程は省略するが、最終的に、磁場 H 、温度 T をパラメータとして、次の様な定性的な表式を得る。

$$\frac{1}{T_1} \sim T^{-1} \exp \left(-\frac{\varepsilon_s}{kT} \right) = T^{-1} \exp \left(-\frac{C\sqrt{H}}{T} \right) \quad (4)$$

但し、 $c = 8S\sqrt{2JSg\mu_B}/k$

ここで c を任意定数として (4) 式を実験と比較した。第 2 図及び第 3 図の実線は、 $c = c_{\text{exp}} = 10.3 (\text{kOe})^{-\frac{1}{2}} \text{K}$ とした時の理論曲線であるが、高温・低磁場で実験値と極めてよい一致を示す事がわかる。第 5 図は、実験結果についての $\ln(T_1/T)$ vs $\sqrt{H}/T$ プロットの結果である。この図から、ソリトンモデルに基づく (4) 式があてはまる領域として $0.3 \leq \sqrt{H}/T \leq 0.6 (\text{kOe}^{\frac{1}{2}} \text{K}^{-1})$ が得られる。 c_{exp} から決まるソリトンのエネルギー値は、磁気定数から求まる理論値に比べて約 30% 小さい。例えば $H = 5 \text{kOe}$ に対してそれぞれ 27K と 33K である。しかし、同様のことが中性子散乱⁵⁾や比熱⁶⁾の解析においてもみられ、これには古典統計或いは希薄ガスモデルの適用がどこまで妥当かなどの本質的な問題が関わっていると思われる。 T_1 の絶対値は、dipole interaction も考慮して、3 本の最隣接 1 次元鎖の寄与から評価される。計算値と実験値には、



第 5 図 実験結果の $\ln(T_1/T)$ vs $\sqrt{H}/T$ プロット。 $\sqrt{H}/T \geq 0.6$ で 3-magnon process, $0.3 \leq \sqrt{H}/T \leq 0.6$ でソリトンモデル (実線: 理論曲線) があてはまる。 $\sqrt{H}/T \leq 0.3$ での点のばらつきは短距離秩序の乱れに帰因すると思われる。

ファクター 3 程度の相違 (前者が小さい) があった。

以上, CsNiF_3 の短距離秩序域における ^{133}Cs の T_1 について, 3-magnon process (低温・高磁場) と希薄ソリトンガスモデル (高温・低磁場) の立場から考察を行った。ソリトンモデルを適用した領域に関しては, 更に高次のスピン波の散乱の可能性についても検討する必要があるが, モデルの予測に一致したこの領域での T_1 の系統的振舞いは, ソリトンが存在するという有力な実験的証拠であろうと考えている。しかし, 近似の改良など今後の課題もいくつかある。

なお, Ising 型反強磁性体 $\text{CsCoCl}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ の ^{133}Cs 及び ^1H の T_1 から磁壁の伝播の効果を見い出したこと⁷⁾、又, TMMC の ^{15}N の T_1 ⁸⁾, CsCoCl_3 の E.S.R.⁹⁾, $\text{CsFeCl}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 及び $\text{RbFeCl}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ の ^1H の T_1 ¹⁰⁾ など磁気共鳴を利用した磁氣的ソリトンの実験的研究があることを付記しておく。

最後に, 単結晶試料を提供していただいた山口裕二氏, 本研究を始めるにあたって有意義な議論をしていたいただいた網代芳民氏に感謝いたします。

文 献

- 1) 吉沢英樹, 斯波弘行, 平川金四郎: 日本物理学会誌 **36** (1981) 357.
- 2) T. Goto and Y. Yamaguchi: J. Phys. Soc. Jpn. **50** (1981) 2133, "Proc. Int. Conf. on Magnetism" Kyoto, 1982, to be published.
- 3) 例えば, A. Abragam "The Principles of Nuclear Magnetism" (Oxford University Press, New York, 1960) Chap. VIII.
- 4) D. L. Huber: Physics Letters **71A** (1979) 353. Non-adiabatic level-crossing のメカニズムを応用した希薄ソリトンガスと核スピンとの衝突による核磁気緩和の理論であるが, 外部磁場の効果が考慮されていないので, CsNiF_3 に対してそのままでは適用出来ない。ここでは, (3) 式から (4) 式の導出に至る過程で, その理論的手法に従った。
- 5) J. K. Kjems and M. Steiner: Phys. Rev. Lett. **41** (1978) 1137.
- 6) A. P. Ramirez and W. P. Wolf: "Proc. Int. Conf. on Magnetism" Kyoto, 1982, to be published.
- 7) T. Goto and T. Kawai: J. Phys. Soc. Jpn. **50** (1981) 3531.
- 8) J. P. Boucher and J. P. Renard: Phys. Rev. Lett. **45** (1980) 486.
- 9) H. Shiba and K. Adachi: J. Phys. Soc. Jpn. **50** (1981) 3278.
- 10) A. M. C. Tinus, C. J. M. Denissen, H. Nishihara and W. J. M. de Jonge J. Phys. C. **15** (1982) L 791.