

パーコレーション磁性体のスピン相関

池 田 宏 信

(高エネルギー物理学研究所ブースター利用施設)

マンデルブロ¹⁾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、結晶のミクロな対称性だけで決まる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0 K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）新しい現象の探索に期待を抱かせるくれる。

以下では、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、について我々の得た中性子散乱実験の成果について説明する。

フラクタル構造と散乱実験

フラクタル構造の特徴は、中性子やX線を用いた散乱実験によって直接検出できる。 d 次元系におけるフラクタル格子内の粒子間の2体相関関数は $G(r) \propto r^{D_f-d}$ と書ける。中性子、X線の散乱強度は $G(r)$ のフーリエ変換で与えられるので、散乱関数 $S(Q)$ は $S(Q) = \int dr G(r) e^{iQr} \propto Q^{-D_f}$ となる。中性子、X線の小角散乱実験は D_f の決定に有効な実験手段であり、シリカアエロゲルを含む幾つかの物質について観測が行われている。²⁾

ごく最近、我々はパーコレーション磁性体中のフラクタル構造を観測することに成功したのでこれについて述べる。^{3,4)} すでに、さまざまな磁性体のパーコレーショ

ン濃度(c_p)、パーコレーションクラスターのフラクタル次元は決定されていて、例えば、2次元正方格子では $c_p=0.593$ 、 $D_f=1.90$ 、3次元単純立方格子では $c_p=0.312$ 、 $D_f=2.48$ である。⁵⁾ 実験には、2次元正方格子イジング型反強磁性体 Rb_2CoF_4 、及び、3次元単純立方格子ハイゼンベルグ型反強磁性体 RbMnF_3 を非磁性 Mg 原子で希釈した系を用いた。中性子の小角散乱を用いて原子間相関関数を見た場合、有限クラスター内及び異なったクラスター間の原子相関も同時に観測されるので、フラクタル構造をもつ無限大クラスター内の原子相関のみを抽出することは極めて困難である。これを避けるため、実験にはパーコレーション濃度よりやや高濃度の試料を用いる。このような系は当然有限温度に磁気相転移点をもち、それ以下の温度では反強磁性長距離秩序をもつことになる。上にあげた磁性体の磁気相互作用は最近接スピンの間に限られているので、異なったクラスター内に属するスピン間の相関は存在しない。低温の磁気秩序状態においては、無限大クラスター内のスピン間相関は反強磁性ブラッグ散乱を与え、また、有限サイズクラスター内のスピン相関は反強磁性ブラッグ点近傍に熱散漫散乱を与えるが強度は極めて小さいと予想できる。無限大クラスターがフラクタル構造をもつ場合、ブラッグ点近傍に q^{-D_f} (q は逆格子点から測った運動量変化)に従う散乱強度を与えることになる。ここで、系の濃度がパーコレーション濃度からずれているときには次の関係が成り立つ。濃度差($c-c_p$)だけで決まる幾何学的相関長 ξ_G が定義され ($\xi_G = |c-c_p|^{-\nu_G} a_0$ 、 a_0 は原子間距離、 ν_G は定数)、 ξ_G より大きな空間スケールで系をみると一様に見えるが、逆にそれより小さな空間スケールで見た場合には系はフラクタルに見える。従って、逆格子空間でいうと、 $q < q_c (=1/\xi_G)$ では一様系で観測されるデルタ関数型の散乱、また、 $q > q_c$ では q^{-D_f} 型の散乱となり、 q_c でクロスオーバーすることになる。

第1図に、2次元系 $\text{Rb}_2\text{Co}_{0.60}\text{Mg}_{0.40}\text{F}_4$ の低温 ($T=4.5\text{K}$, 7.5K , 10K ; $T_N=20\text{K}$)での(100)磁気逆格子点近傍における弾性散乱強度分布を示す。³⁾ 点線は装置分解能曲線であり、ガウス型の分布をしている。実験データには高調波成分が含まれているが、これは分解能曲線と同形の寄与を与える。図から明かなように、デルタ関数型(実際にはガウシアンとして観測される)以外の磁気散乱が $q>0$ の領域で観測されている。三つの異なる温度で測定を繰り返したのは、熱拡散散乱の寄与があるかどうか確認するためであり、あるとすれば強度の温度変化となってあらわれる。とくにイジング磁性体では、相転移点以下の臨界散乱強度は温度が低下するとともに急激に減少する。図に示した実験結果は、測定した温度域では臨界散乱強度は無視できるほど小さいことを示している。これらのことから、得られた散乱強度は、無限クラスター内のスピン間の長距離秩序のみを反映したものであることがわかる。強度対波数の両対数プロットを行うと直線になり、この直線の傾きは 1.95 ± 0.07 であり、正方格子のフラクタル次元1.90に一致する。因に、 $c=0.60$ の試料の幾何学的相関長は $730a_0$ であり、クロスオーバー波数 q_c は $3.1 \times 10^{-4} \text{ 2}\pi/a$ となる。 $q > q_c$ の広い範囲でガウス型と全く異なる散乱が観測された由縁である。

秩序形成のキネティクス

さて、上に述べたようなパーコレーション格子上で磁気秩序が形成されていく動的過程はどのように記述されるのだろうか。はじめに無秩序状態であったものが時間の経過とともに徐々に秩序が形成され最後には長距離秩序に至る過程は、これまで数多く研究されてきた一様系のそれとどのように異なっているのであろうか。一様系では秩序変数が非保存の場合（反強磁性体がこれにあたる）、ドメインの成長は界面でのエネルギー損失を減少させる方向に向かうことから、ドメインサイズ($R(t)$)の時間発展は $R(t) \propto t^{1/2}$ に従う。しかし、フラクタル構造をもつパーコレーション格子の場合どのような法則が成り立つのであろうか。このことを明かにするために試みられた中性子散乱の実時間測定実験を以下に紹介する。⁷⁾

用いた試料は2次元希釈イジング型反強磁性体 $\text{Rb}_2\text{Co}_{0.60}\text{Mg}_{0.40}\text{F}_4$ ($T_N=20\text{K}$)であるが、初期状態としての磁氣的無秩序状態をどうやって実現させるかが問題となる。合金系の秩序—無秩序相転移と異なり、磁気転移の場合、高温の常磁性状態からいくら速く温度を低温の秩序状態にクエンチさせたとしても、実現するのは長距離秩序状態であるというのが現実である。スピン間の交換相互作用が 1meV のとき、これを時間スケールに変換すれば 10^{-11} 秒となり、相転移温度を通過するときマイクロなタイムスケールで秩序が進行するのである。この実験では、無秩序状態をつくるためランダム磁場効果⁸⁾という新しい概念を利用した。イジング型異方性をもつ希釈反強磁性体などのランダム磁性体のスピン軸方向に一様な静磁場(H_0)をかけると、ランダム磁場が誘起され、系の長距離秩序が破壊されマイクロなドメインに分裂する。このときできるドメインのサイズは、かける磁場が大きいほど小さくなる。上記の系の場合、 $H_0=5$ テスラのときのドメイン長は $10a_0$ 程度である。これは十分マイクロなサイズである。 $H_0=0$ での系の平衡状態は長距離秩序であるので、 H_0 を取り去ると系は秩序を回復していく。この回復にはマクロなタイムスケールを要する。乱れた磁気系では不純物の存在のためドメインのピンニングが生じ、系の緩和時間は長くなるからである。実験でこれを見ると、反強磁性ブラッグ点近傍の磁気弾性散乱の幅が時間と共にシャープになり通常のブラッグ散乱に移行していくことになる。この散乱の幅の逆数がドメイン長に比例すると考えてよい。第2図に実例として、 $H_0=5$ テスラかけて無秩序状態をつくった後磁場を切り、その後の(100)逆格子点近傍の中性子散乱強度を追跡した結果を示す。詳しい解析によると、ドメイン長は $(\log(t))^x$ に従って成長する。しかも x は温度と共に変化し、 $T=0\text{K}$ では $x=0$ （凍結する）で、温度上昇と共に x は増大する。これは次のように解釈される。パーコレーション磁性体の幾何学的形態は三つの特徴ある部分から構成されている。それは、1次元的に結合した鎖、枝分れした有限の大きさをもつダングリッドエンド、1次元鎖が枝分れする場所で複数の原子が絡み合ったデコレーションと呼ばれる部分である。ドメインが成長する場合、1次元鎖上での反位相境

界（キンク）は自由に左右に移動できるので、この鎖は成長則に影響を与えない。ダングリングエンドの寄与も、その有限な長さゆえ無視できる。結局、デコレーションの部分で反位相境界が通過するときに要するエネルギーがタイムスケールを決めるものと考えられる。イジング系では、このエネルギーは熱活性エネルギー $E(R)$ となる。従って、特性時間 t は、 $t \approx e^{E(R)/kT}$ となり、もし $E(R) \approx R^{1/x}$ であれば、 $R(t) \approx (\log(t))^x$ となる。さらに、 x が強い温度依存性をもつことは、磁性不純物によるドメインのピンニングがある系のキネティクスに対しては、熱揺らぎの効果が重要であることを示唆している。

フラクトン励起

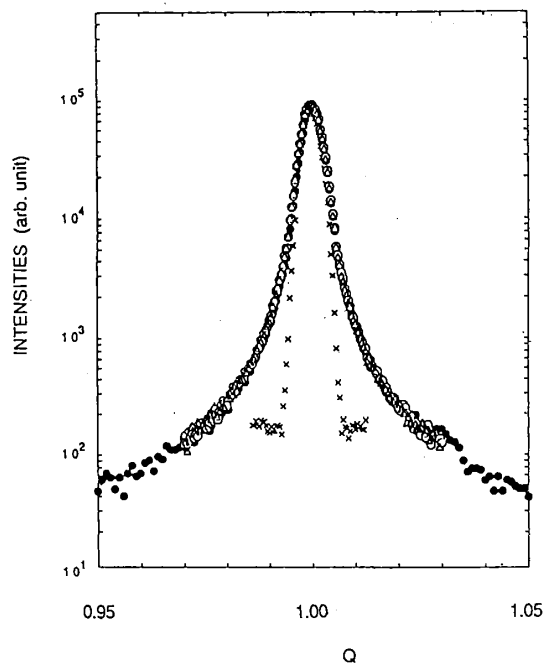
フラクトン励起というのは、強く乱れた媒質の原子振動に対して1982年にAlexanderとOrbach⁹⁾によって導かれた新しい概念である。幾何学的相関長 ξ_G をもつフラクタル格子の振動の形態は、長波長領域では系の一様性を反映して通常フォノンで記述されるが、 ξ_G より短い長さのスケールでは高振動数の励起で記述されるはずでこれをフラクトンと名付けた。現在、大規模計算機シミュレーションの技術も進みその実体がより詳細に明らかになりつつある。⁵⁾ 実験的には、現在3次元ハイゼンベルグ反強磁性体 $\text{RbMn}_{0.39}\text{Mg}_{0.61}\text{F}_3$ ($T_N=19\text{K}$; $c_p=0.312$) の中性子非弾性散乱実験が進行している。¹⁰⁾

第3図に低温(4.5K)で測定したエネルギースペクトルの波数依存性を示す。縦軸は複素帯磁率を意味し、また、波数ベクトルは $[0\ 1\ 1]$ 方向に取っているためゾーンバウンダリーでの波数値は0.375である。この図では分かりづらいが、 $q=0.375$ のスペクトルには希釈反強磁性体のスピン波励起であるイジングクラスター励起が1.5, 3.0, 4.5, 6.0 meVの位置に現れている。ブリルアンゾーン全域にわたりこのイジングピークが観測されているが、問題は、それ以外の幅広いスペクトルが同時に観測されていることにある。この幅広いスペクトルは図中に破線で示されている。試料の濃度から評価されたフラクタル一様系のクロスオーバー波数は0.024なので、図に示した波数領域では系の構造はフラクタルを示すことに注意されたい。これらのスペクトルが、スピン波とは全く異なり、顕著な波数依存性をもたないことは、励起が局所的に起きていることを示唆する。また、エネルギースペクトルがブロードであることを考え合わせると、局所的にかつランダムに分布したダングリングエンドの連続（ハイゼンベルグ対称性を反映している）回転振動のイメージでこの現象を捉えることができる（ハイゼンベルグフラクトン）。イジングピーク強度に比べてはるかに強い散乱強度をもつこのスペクトルは、この新しい振動モードが大振幅をもつことを意味している。この破線部分の強度分布はDHO(Damped Harmonic Oscillator)モデルで極めてよく記述できる。このときの振動数と減衰常数は同じ波数依存性を示し $q^{1.1}$ に比例する。振動数と減衰常数が同じ波数依存性をもつことは、フラクタル構造には固有の長さが存在しな

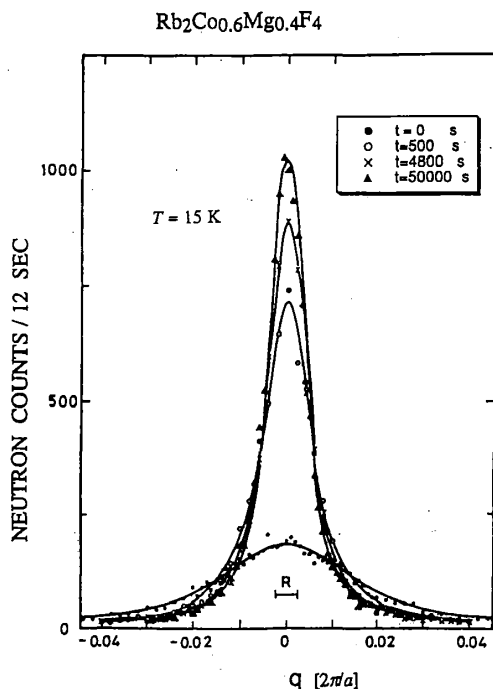
いことから理論的に導かれるSLSP(Single Length-Scale Postulate)の必然的な結果であり、このこともこの実験ではじめて確認された。さらに興味深いのは、これらスペクトルの温度依存性である。第4図に $q=0.2$ のスペクトルの温度変化を示している。 $T=9\text{K}(\approx 1/2 T_N)$ ですでにイジングピーク(スピン波)は殆ど消えている。イジングピークは個々のスピンの感じる分子場のエネルギーに対応するので、秩序状態とはいえ熱揺らぎの増大とともに消滅する。驚くべきことに、 $T=100\text{K}(> 5T_N)$ においてもオーバーダンプしたスペクトルは依然として消滅せず、かつ、ピークエネルギーは温度上昇とともに増大している。これらは、通常のスピン波の概念では全く説明出来ない現象であり、温度が上昇するにつれフラクトン振動が熱エネルギーを得てその振動数を高めていくことを直接示しているものと解釈される。

参考文献

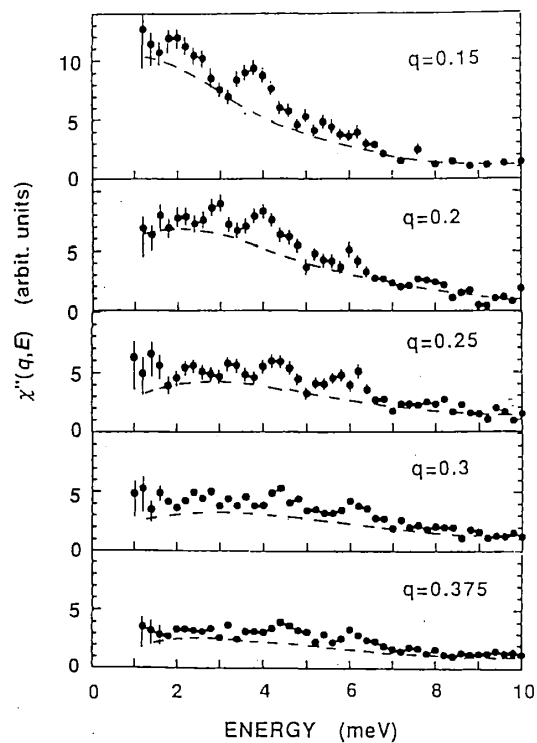
- 1) B.B.Mandelbrot: *The Fractal Geometry of Nature* (Freeman, San Fransisco, 1983).
- 2) 例えば、T.Fleltoft, J.K.Kjems and S.K.Sinha: Phys.Rev.B 33, 269 (1986).
- 3) H.Ikeda, K.Iwasa and K.H.Andersen: J.Phys.Soc.Jpn. 62,3832 (1993).
- 4) H.Ikeda, K.Iwasa, M.Takahashi and T.Kamiyama: unpublished.
- 5) 例えば、T.Nakayama, K.Yakubo and R.Orbach: Rev.Mod.Phys. to be published.
- 6) H.E.Stanley, R.J.Birgeneau, P.J.Reynolds and J.F.Nicoll: J.Phys.C 9, L553 (1976).
- 7) H.Ikeda, Y.Endoh and S.Itoh: Phys.Rev.Lett. 64, 1266 (1990).
- 8) 例えば、池田宏信：日本物理学会誌 39, 186 (1984).
- 9) S.Alexander and R.Orbach: J.Phys.Lett.(Paris) 43, L625 (1982).
- 10) H.Ikeda, J.A.Fernandez-Baca, R.M.Nicklowsky, M.Takahashi and K.Iwasa: unpublished.



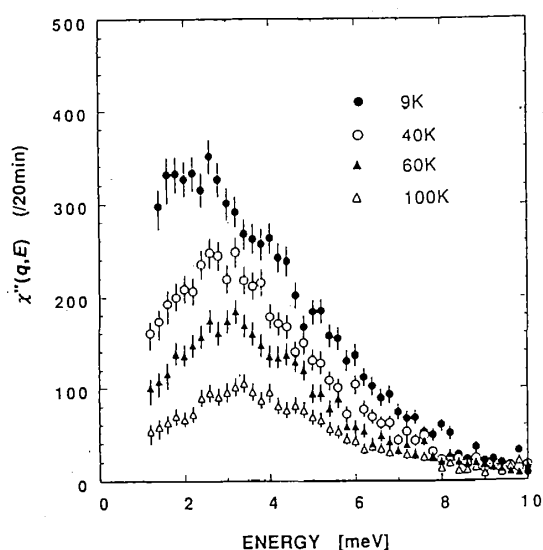
第1図 2次元反強磁性体 $\text{Rb}_2\text{Co}_{0.6}\text{Mg}_{0.4}\text{F}_4$ ($T_N=20\text{K}$)の(100)磁気逆格子点近傍の中性子弾性散乱強度の分布。³⁾ 破線は分解関数をあらわし、実験データ ($T=4.5\text{K}$ (黒丸), 7.5K (白丸), 10K (三角))にはこれと同型の高調波成分を含んでいる。



第2図 $\text{Rb}_2\text{Co}_{0.6}\text{Mg}_{0.4}\text{F}_4$ ($T_N=20\text{K}$)の(100)磁気弾性散乱強度分布の時間発展($T=15\text{K}$)。 ⁷⁾



第3図 $\text{RbMn}_{0.39}\text{Mg}_{0.61}\text{F}_3$ ($T_N=19\text{K}$)の $T=4.5\text{K}$ でのエネルギースペクトルの波数依存性 ($q=0.15, q=0.2, q=0.25, q=0.3, q=0.375$)。 ¹⁰⁾ イジングクラスター励起から生じるピークがオーバーダンプした幅広いスペクトル(破線)の上に重なっている。



第4図 $\text{RbMn}_{0.39}\text{Mg}_{0.61}\text{F}_3$ ($T_N=19\text{K}$)の $q=0.2$ でのエネルギースペクトルの温度依存性。 ¹⁰⁾