

2次元混晶強磁性系 $K_2Cu_xM_{1-x}F_4$ ($M=Co, Mn$) の 緩和と非線形現象

千葉大学 理学部 山田 勲

1. はじめに

スピングラスの非線形帯磁率 (χ_2) はスピン凍結温度において負発散することが理論的に指摘され、実験的にも確認された。このことは通常の強磁性体や反強磁性体、あるいはスピングラス以外のランダム磁性体の臨界現象においても χ_2 の振舞いに興味を喚起した。反強磁性体では温度の T_N 前後でのステップ状の変化、強磁性体では T_c 通過に伴う正負側への発散などが理論的に示され、実験で確かめられた。ところで実験で χ_2 を調べるには交流法を用いる。交流法では χ_2 は周波数 ω の交流磁場による誘導電圧の 3ω の高調波成分として、線形帯磁率 χ_0 とは全く別の信号として検出されるので、直流法で得た χ_2 、即ち観測された帯磁率から線形部分を差し引いて χ_2 を導出するよりはるかに明確な χ_2 を得ることが出来る。さらに交流法で得た $\chi_0 \equiv \chi'_0 - i\chi''_0$ から緩和時間について重要な情報がもたらされるが、同じく交流法による χ_2 にも緩和に絡んだ現象が内在されているはずである。従って交流非線形帯磁率 (χ_2) の研究は スピングラスでの負発散の確認でその役目を終えたのではなく、今後スピン系の動的現象解明に大きな役目をはたす可能性を持っている。この観点から本研究を進めた。

化合物磁性体の磁気イオンをランダムに異種の磁気イオンで置換した磁性系では、磁気相転移温度や磁気凍結温度近傍以下の温度領域で、スピンの緩和が極めて遅くなることが知られている。スピングラス系あるいはランダム磁場効果が支配する系におけるこの long-time dynamics の現象は理論、実験両面からさかんに研究されている。ランダム系の中で、異種イオンの濃度が

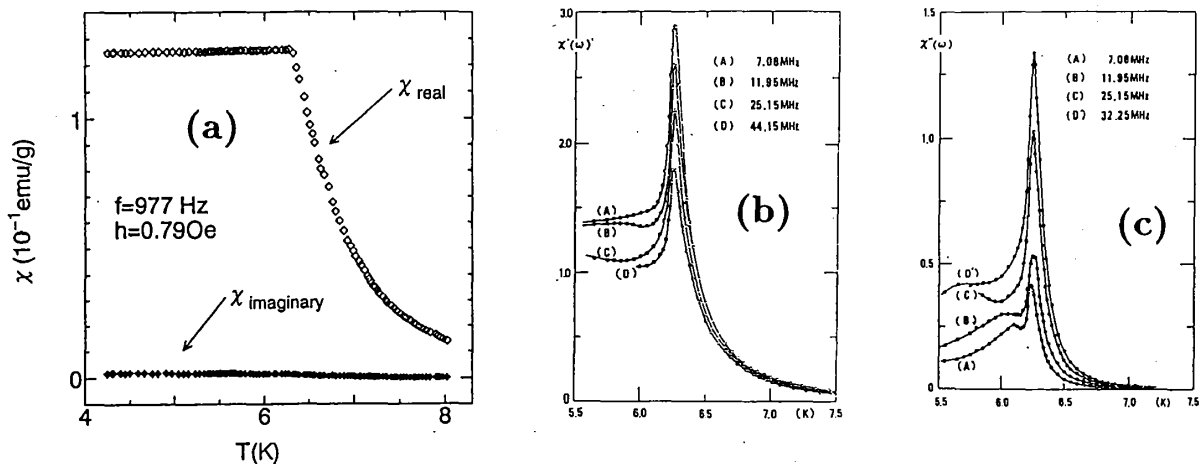


図 1. K_2CuF_4 ($x=1$) の χ_0 . (a) $f < 1 \text{ kHz}$ を代表する. (b) および (c) は数 10 MHz における χ_0 で, (b) は実数部分, (c) は虚数部分.

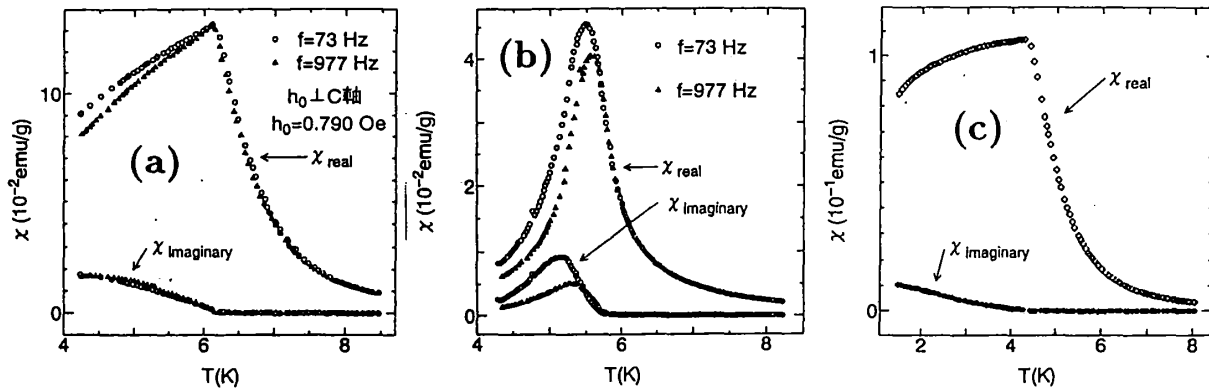


図 2. (a) Cu-Co ($x = 0.99$, XY 相) の χ_0 , (b) Cu-Co ($x = 0.91$, Ising 相) の χ_0 , (c) Cu-Mn ($x = 0.93$, XY 性) の χ_0 . いずれも実数部分.

低くてランダム磁場を発生させるほどでもなく、また長距離秩序を壊すほどでもない系においても long-time dynamics は磁気秩序化の動力学を slow down させることが理論的に指摘されている。^(1,2) 例として強磁性ランダム系をとる。母体の磁気イオンと異種磁気イオンとの結合は反強磁性的であるとする。異種イオンで置換したことによる効果が極めて弱い場合、強磁性的長距離秩序は生じるであろう。しかし、異種イオンを中心にして、up, down に磁化した spin のグループに別れ、磁区を作るであろう。それらの磁区間に生じる磁壁は交換相互作用が平均値より弱い場所で動きが制約される。異種イオン配置のランダム性によって、磁区の磁化及びその温度依存性は磁区ごとに異なる。従って、磁区の構造は温度と共に連続的に再配列を繰り返す。これがスピン緩和の slow down として交流帯磁率に現われる。交流線形帯磁率 χ_0 の実数及び虚数部分 (χ'_0 , χ''_0) から、緩和時間を推定できることは古くから知られているが、非線形帯磁率に

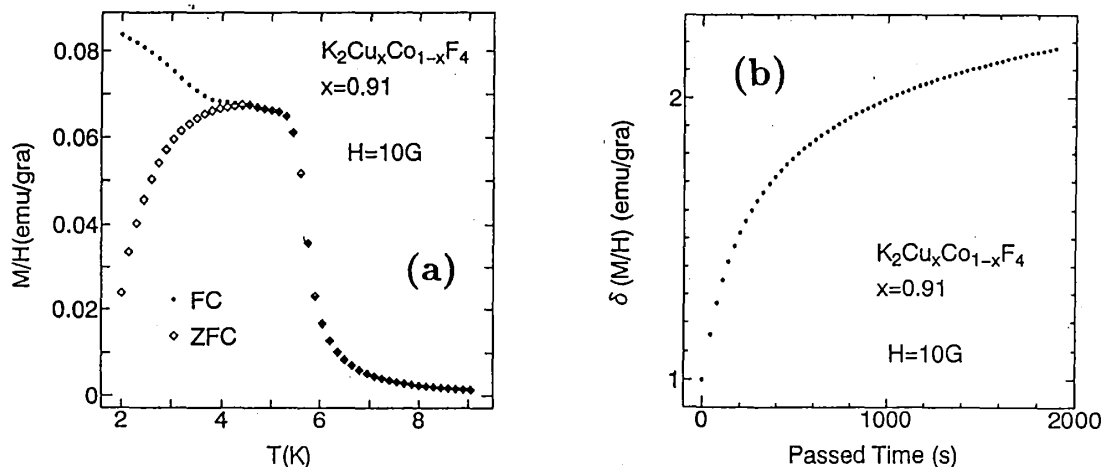


図 3. (a) Cu-Co ($x = 0.91$, Ising 相) の $\chi_{DC} \equiv M/H$, (b) Cu-Co ($x = 0.91$, Ising 相) の 2 K における χ_{DC}^{ZFC} の時間変化.

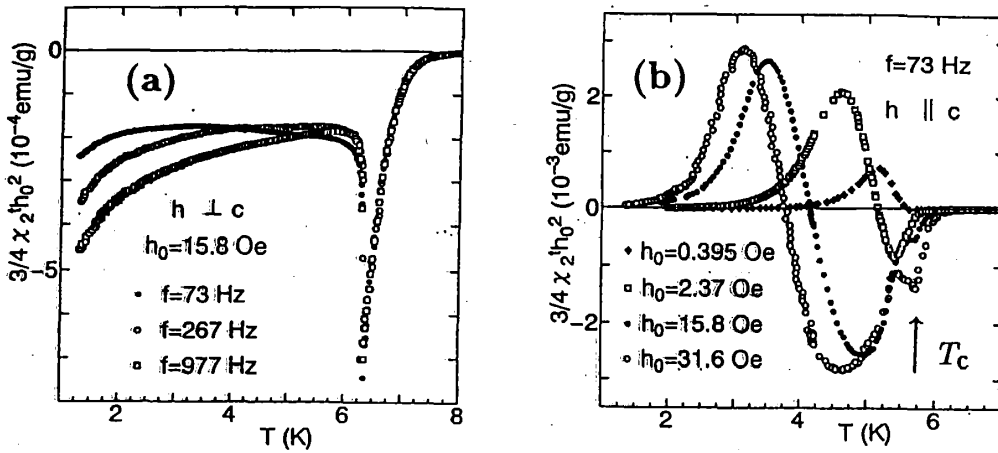


図 4. (a) K_2CuF_4 ($x=1$) の χ'_2 , (b) $Cu-Co$ ($x=0.91$, Ising 相) の χ'_2 .

long-time dynamics の効果がどのように現われるか、まだ分かっていない。

ここでは 2 次元強磁性体 K_2CuF_4 の Cu^{2+} を Co^{2+} , あるいは Mn^{2+} でランダムに置換した混晶系 $K_2Cu_xCo_{1-x}F_4$ (Cu-Co と略す) および $K_2Cu_xMn_{1-x}F_4$ (Cu-Mn) における強磁性相を対象にする。Cu-Co は $1 \geq x > 0.85$ の範囲で x の低下に伴ない, XY, Oblique, Ising の 3 強磁性相に分かれる。この 3 相分離は異方性の競合によるものである。一方 Cu-Mn も x の高い領域で強磁性相を持つが、異方性の競合が弱いので、XY 相のみである。

2. 線形帯磁率

交流法による χ'_0 , χ''_0 は次のように定式化されている。 $\chi'_0 = \chi_\infty + (\chi_s - \chi_\infty)/(1 + \omega^2\tau^2)$, $\chi''_0 = (\chi_s - \chi_\infty)\omega\tau/(1 + \omega^2\tau^2)$ ここで τ は緩和時間, χ_s は熱平衡状態の帯磁率, χ_∞ は断熱状態の帯磁率である。従って χ'_0 と χ''_0 との測定から τ を得ることが出来る。Cu-Co や Cu-Mn の強磁性相で、 K_2CuF_4 に比べて緩和時間がいかに遅くなるかを調べた。図 1 に K_2CuF_4 ($x=1$) の転移温度近傍の χ_0 を示す。 K_2CuF_4 は交流磁場周波数 $f = \omega/2\pi < 1$ kHz の範囲では χ''_0 は現われず (図 1(a)), $f \simeq$ 数 10 MHz $\sim$ 100 MHz で χ''_0 が観測され (図 1(c)), χ'_0 と χ''_0 とから緩和時間は $\tau \simeq 10^{-9}$ sec と推定されている。⁽³⁾ Cu-Co 系の $x=0.99$ (XY), $x=0.91$ (Ising) の試料では 1 kHz 以下で χ''_0 が観測される (図 2(a), 2(b))。この結果から Co による置換で τ が $10^{-3} \sim 10^{-4}$ sec 程度まで長くなっていることが分かる。Cu-Mn 系でも Cu-Co 系の XY 相と同様な χ''_0 が観測された。次に直流法による磁化の温度依存性を示す。 $M/H \equiv \chi_{DC}$ として、Cu-Co, Cu-Mn 両系ともに χ_{DC} に ZFC と FC との履歴が観測された。例として Ising 性の Cu-Co ($x=0.91$) の結果を図 3(a) に示す。さらに図 3(b) から分かるように、2 K における χ_{DC}^{ZFC} の時間変化は $\log t$ である。この時間依存性は XY 性の Cu-Co ($x=0.99$) および Cu-Mn ($x=0.93$, XY 性) でも同様である。

3. 非線形帯磁率

図4(a)に K_2CuF_4 の非線形帯磁率 χ_2 の実数部分 χ'_2 を示す。 T_c へ向かう温度低下と共に、負発散が現われるが、強磁性体に対する理論が示唆する $T < T_c$ での正発散は現われなかった。正発散が観測されないのは磁区の発生によるものと解釈されている。 $Cu-Co$ のIsing相($x = 0.91$)における χ'_2 は T_c で負発散を示した後に温度の低下と共に負側から正側へ大きな変化を示す(図4)。この現象は今のところ的確な説明が出来ないが、温度変化に伴う磁区の再配列、すなわち秩序状態での動的現象を反映していると考えられる。同様な現象は $Cu-Co$ 系のXY相($x = 0.99$)および $Cu-Mn$ ($x = 0.93$)においても観測された。

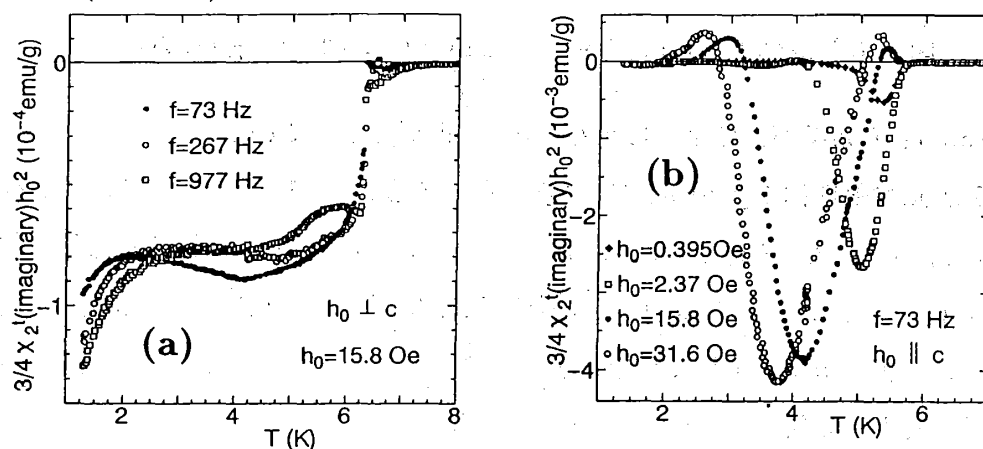


図5. (a) K_2CuF_4 の χ_2'' , (b) $Cu-Co$ ($x = 0.91$, Ising 相) の χ_2'' .

以上のように $T < T_c$ における線形帯磁率 χ_0 と非線形帯磁率 χ_2 との振舞いを合わせて観ると、 $Cu-Co$, $Cu-Mn$ 系での long-time dynamics が χ_2' の異常な振舞いをもたらしていることは間違いないさそうである。しかし χ_2 の温度依存を理論的に説明するには至っていない。

最後に χ_2 の虚数部分 χ_2'' の温度変化を図5に示す。 $Co-Co$ や $Cu-Mn$ だけでなく K_2CuF_4 においても T_c 直下から χ_2'' が観測された。 χ_2 の虚数部分が何を意味するのか、今後の理論的研究が望まれる。

参考文献

- (1) D.A. Huse and C.L. Henley, Phys. Rev. Letters **54** (1985) 2708 and refs. therein.
- (2) D.S. Fisher, J. Appl. Phys. **61** (1987) 3672 and refs. therein.
- (3) T. Hashimoto and A. Sato, J. Phys. Soc. Jpn **38** (1975) 345.