

氏名	高橋 美和子
学位（専攻分野）	博士（理学）
学位記番号	総研大甲第69号
学位授与の日付	平成6年3月24日
学位授与の要件	数物科学研究科 加速器科学専攻 学位規則第4条第1項該当
学位論文題目	中性子散乱による希釈ハイゼンベルグ型反強磁性体の スピン相関の研究
論文審査委員	主査 教授 渡辺 昇 教授 渡辺 昇 教授 池田 宏信 教授 木原 元央 教授 安藤 正海 助教授 池田 進 助教授 森 義治 教授 高山 一（筑波大学） 教授 吉澤 英樹（東京大学）

磁性体を非磁性イオンで希釈していくと磁気相転移温度 T_c が低下し、磁性イオン濃度 c がパーコレーション濃度と呼ばれる濃度 c_p で、交換相互作用によって結合したスピンの無限遠クラスターは消え、相転移温度は零になる。この c_p 近傍でのスピンの結合の形態はパーコレーションネットワークと呼ばれ、その幾何学的相関距離 ξ_G 以下のスケールでフラクタル構造をとる。一方、 c_p 以下では交換相互作用で結合したクラスターは有限の大きさとなり、系全体としては常磁性状態となる。本研究は、3次元希釈ハイゼンベルグ型反強磁性体について、このように、各濃度領域によって異なるスピン結合の形態を反映したスピン相関を、中性子散乱を用い、その動的性質を中心として明らかにする目的で行なった。

試料は RbMnF_3 を非磁性 Mg で希釈した $\text{RbMn}_c\text{Mg}_{1-c}\text{F}_3$ ($c = 0.74, 0.63, 0.34, 0.315, 0.15$) を用いた。 RbMnF_3 は異方性が非常に小さく、理想的な3次元ハイゼンベルグ型反強磁性体である。この結晶を Mg で希釈した場合、 Mn は Mg でランダムに置き換えられ、 $c_p = 0.312$ で3次元立方格子のパーコレーションネットワークを形成する。

まず、 $c > c_p$ ($c = 0.74, 0.63$) の系については、 T_c 以下の秩序状態での励起状態であるスピン波励起が、希釈によってどのように変調されるかを調べた。実験は、日本原子力研究所の研究用原子炉 JRR3M に設置された TOPAN 分光器を用いて行ない、励起スペクトルの波数依存性を観測した。その結果、波数の小さな領域では系全体を伝搬するスピン波が、波数の大きな領域では局所構造を反映した局在励起が観測され、ある波数 q_c でこれらの励起状態がクロスオーバーすることが明らかになった。これは定性的には、ハイゼンベルグ系においても希釈した場合、波数の大きな領域では希釈した効果が大きく、その励起状態の伝搬が妨げられて局在化するためと解釈される。観測されたこのクロスオーバー現象についてその機構を理論的側面から定量的に説明することが、この問題に関する今後の課題である。

$c < c_p$ ($c = 0.15$) の系では、孤立した数個のスピンからなるクラスター内の励起状態が中性子非弾性散乱によってどのように観測されるかを調べた。高エネルギー物理学研究所中性子散乱施設 KENS に設置された LAM-40 分光器を用いた実験の結果、2-スピン、及び3-スピンクラスター内の励起状態を明瞭に観測することに成功した。中性子散乱は、

従来、磁氣的に希薄な系に対しては強度と分解能が不十分であることが原因でほとんど用いられていなかったが、この実験によって、磁氣的に希薄な磁性体に対しても中性子非弾性散乱が十分適応可能であることが明らかにされた。

$c \sim c_p$ ($c = 0.34, 0.315$) の系については、相関距離 ξ_G 以下でフラクタル構造をとることを反映したスピン相関を調べた。

フラクタル格子上では、半径 R の領域内に含まれる質量点の数 M は R^{D_f} に比例する。 D_f はフラクタル次元で非整数である。このような散乱体からの中性子散乱強度は波数 q に対し q^{-D_f} に比例する。一方、質量点が一様に分布している場合、その散乱強度は良く知られているように、ブラッグ点にデルタ関数形として現われる。KENS に設置された高分解能回折装置 HRP を用い、パーコレーション磁性体 $\text{RbMn}_{0.34}\text{Mg}_{0.66}\text{F}_3$ について行なわれた実験では、その磁気ブラッグ点近傍の散乱強度が $q < q_c$ ($\sim \xi_G^{-1}$) ではデルタ関数的、 $q > q_c$ では q^{-D_f} ($D_f \sim 2.5$) となっていることが実際に観測され、スピンの結合状態が ξ_G より小さなスケールではフラクタル構造をとり、 ξ_G より大きなスケールでは一様であることが示された。

また、フラクタル格子上での拡散は一般の系より遅くなり、その到達距離の二乗平均は、 $\langle R^2(t) \rangle \sim t^{2/d_\omega}$ (t は時間) となる。指数 d_ω は、一様な系においては Fix 法則に従い次元によらず $d_\omega = 2$ であるが、フラクタル格子上では遅い拡散を反映し、 $d_\omega > 2$ となる。この異常拡散を観測するために、KENS に設置された高分解能非弾性散乱装置 LAM-80ET を用いて $\text{RbMn}_{0.315}\text{Mg}_{0.685}\text{F}_3$ の磁気臨界緩和におけるエネルギースペクトルを測定し、その波数積分強度のエネルギー依存性を調べた。LAM-80ET 分光器は、広い波数領域のエネルギースペクトルを高分解能 ($\Delta E > 2\mu\text{eV}$) で効率良く測定することができる装置であるが、これによって得られる波数積分強度のエネルギー依存性は、フーリエ変換することにより、拡散における自己相関関数の時刻依存性と結びつく。一様な系の臨界散乱の場合には、この波数積分強度のエネルギー依存性は臨界点近傍で成り立つスケール則により、 $I(\omega) \sim \omega^{-0.31}$ となる。一方、フラクタル格子上では異常拡散によって緩和が遅くなり、さらその波数積分がフラクタル次元上で行なわれるために指数が変わり、 $I(\omega) \sim \omega^{-0.82}$ となる。測定の結果、得られたエネルギースペクトルは $I(\omega) \sim \omega^{-0.8 \pm 0.1}$ と

なった。これは、フラクタル系において予想されるエネルギー依存性と一致し、パーコレーション磁性体の臨界緩和における拡散が異常拡散となっていることを示す。フラクタル格子上的異常拡散が現実の系において観測された例はまだなく、本実験が初めてである。そのような意味でこの実験は非常に意義深いものと思われる。

以上に述べたように、本研究では各濃度での、その濃度に特徴的なスピン相関を中性子散乱によって明確に観測することができた。これは中性子散乱によって、スピンの時空相関が直接観測されるという点とともに、その実験技術が向上した点に負うところが大きい。強度、分解能のレベルが上がったこととともに、多種多様な特徴をもつ分光器の開発が進められ、従来測定不可能であった問題に対しても、中性子散乱が有効となってきた。今後、中性子散乱の応用範囲はさらに広まることと思われる。

(論文審査結果)

磁性体を非磁性イオンで希釈していくと磁気相転移温度 T_c が低下し、磁性イオン濃度 c がパーコレーション濃度 c_p で、交換相互作用によって結合したスピンの無限遠クラスターは消え、相転移温度は零になる。この c_p 近傍でのスピンの結合の形態はパーコレーションネットワークと呼ばれ、その幾何学的相関距離 ξ_G 以下のスケールでフラクタル構造をとる。一方、 c_p 以下では交換相互作用で結合したクラスターは有限の大きさとなり、系全体としては常磁性状態となる。本研究は、3次元希釈ハイゼンベルグ型反強磁性体として RbMnF_3 を非磁性Mgで希釈した $\text{RbMn}_c\text{Mg}_{1-c}\text{F}_3$ ($c=0.74, 0.63, 0.34, 0.315, 0.15$)を用い(試料は自作)、各濃度領域によって異なるスピン結合の形態を反映したスピン相関、特に動的性質を、中性子散乱により研究したものである。その結果次のようなことを明らかにした。

- (1) $\text{RbMn}_{0.74}\text{Mg}_{0.26}\text{F}_3$ ($c > c_p$) でスピン波とイジングのラスタース励起がクロスオーバーすること。
- (2) $\text{RbMn}_{0.15}\text{Mg}_{0.85}\text{F}_3$ ($c < c_p$) ではクラスター内部励起が明瞭に観測されること。
- (3) $\text{RbMn}_{0.34}\text{Mg}_{0.66}\text{F}_3$ (c_p 近傍) ではフラクタル構造の特徴がはじめて観測されたこと。
- (4) $\text{RbMn}_{0.315}\text{Mg}_{0.685}\text{F}_3$ (c_p 近傍) でフラクタル次元をもつ物質であることを特徴づける異常スピン拡散がはじめて観測されたこと。

以上の如く、本研究では磁性イオン濃度の広い範囲で中性子散乱実験を行い、高・低濃度領域及び特に c_p 近傍でのスピン相関をはじめて明らかにしたことが評価される。中性子散乱実験は、高エ研ブースター利用施設のスポレーションパルス中性子源に設置されている高分解能回折装置ならびに高分解能分光器と、原研改3号炉に設置されている3軸型中性子分光器等を駆使し、それぞれの特長および性能をフルに利用して初めて測定可能となったもので、本人は実験能力についても十分評価できる。またフラクタル格子上での異常スピン拡散については、散乱関数の理論的導出も行っており、物理に対する高い理解も伺われ、数物研究科加速器科学専攻の博士学位論文として相応しい内容を有していると判断した。