

磁気構造変化の実時間追跡

元屋清一郎 (東京理科大学理工学部)

強磁性や反強磁性といった磁気秩序の形成や磁気構造の変化など磁性体における相転移は、温度・磁場などの外場の変化に従って直ちに起きるものとされてきた。例外としてスピングラス(薄い磁性原子濃度を持ち特殊な磁気転移を示す物質)や永久磁石材料など不規則性や不均一組織を持つ物質では長時間にわたる磁気的性質の変化があることが知られている。しかし、これまで3次元の規則構造を持つ物質での磁気秩序の形成過程や磁気構造の変化過程を直接観測したという報告はなかった。私たちは最近CeIr₃Si₂という化合物で磁気構造が数時間から数十時間にわたって変化していく現象を偶然発見した。

磁化測定などからこの物質ではCeの持つ磁気モーメントが4.1 K以下で反強磁性に秩序し(中間温度相)、さらに温度を下げると3.3 Kで別の磁気構造(低温相)へと相転移すると考えられていた。この逐次相転移と呼ばれる現象自身は珍しいものではない。しかし、この物質の磁気構造を決めるために行なった中性子回折実験では次のような新奇な振る舞いが観測された。

試料を4.1 K以上の常磁性相から低温相の温度に冷却した直後には途中に通過した中間温度相の磁気構造に対応する磁気ブラッグ反射のみが観測された。時間経過とともにこの反射強度は減少し、代わって低温相の磁気構造に対応する反射強度が数時間という長い時間をかけて増加した。しかし、それぞれのブラッグ反射の位置には変化はみられなかった。この結果は2種類の磁気構造を持つ領域が共存し、各領域の体積比が長時間にわたって連続的に入れ替わる現象であることを示している。これは誘電体の構造相転移で見られる長い潜伏時間を伴う1次相転移とは全く異なる現象である。

CeIr₃Si₂が示す磁気的特徴(逐次相転移

とメタ磁性転移)をキーワードとして他の物質を探索したところいくつかの物質でも類似の現象が見られた。このうちCa₃Co₂O₆は磁性原子であるCoの1次元鎖が三角格子を作るフラストレート磁性体である。

時間変化の存在を考慮した中性子散乱実験から低温での磁気構造が決定された。1次元鎖を作るCo原子の磁気モーメントは(10 Kでは)1,150 Åにわたる強磁性的に整列した領域が方向を反転して繰り返されており、この方向を反転する位置が三角格子の上で周期的に移動してc軸方向に2,300 Åの周期を持つ3次元磁気秩序を形成している。この磁気的周期は温度とともに連続的に変化する。しかし、温度を変えると磁気的周期がその温度での平衡値に達するのにやはり数時間から数十時間を要するという特徴を示した。CeIr₃Si₂で観測された時間変化は2つの定まった構造の間での不連続な変化であるのに対して、磁気構造の周期が連続的に時間変化するという点において異なる種類の時間変化と言える。

これら2つの物質を含め、長時間にわたる磁気構造の変化を見いだした物質に共通する特徴は強磁性面あるいは強磁性鎖の存在と競合する磁気相互作用によるフラストレーションである。これらの物質の磁気構造の変化は強磁性面の方向や強磁性鎖の長さの変化によって達成される。しかしこれらは大きなエネルギー障壁のため一斉には起こり得ない。まず転移の核となる磁化の反転した小領域が形成された後、核と周囲との境界が移動する方式で平衡相の領域拡大が進行すると考えられる。CeIr₃Si₂ではこの核生成速度の遅さが長時間変化の要因であることも検証された。他の多くの物質でもここで紹介したような時間に依存する現象が見落とされてきたのかもしれない。

—Keywords—

中性子散乱による磁性研究：中性子線を物質に入射するとX線の場合と同様に回折現象が生じる。X線を散乱する主体は電子の電荷であるが、中性子は原子核によって散乱される。また、中性子は磁気モーメントを持っているので磁気モーメントを持つ原子との間にはたらく磁気的力によっても散乱される。従って、中性子線は原子の配列(結晶構造など)と磁気モーメントの配列(磁気構造など)両方の情報を与える。物質研究に使われるのは通常熱中性子と呼ばれる領域の中性子線(0.1 nm程度のド・ブロイ波長を持つ)であり、固体中の格子振動や磁性体のスピン波などの励起エネルギーと同程度の運動エネルギーを持つ。従って、エネルギーの授受を伴う散乱(非弾性散乱)の観測も容易であり、これらの励起現象の研究にも威力を発揮する。磁性研究の面から見れば中性子散乱は磁気構造などの静的情報だけでなく、スピン波励起、結晶場励起などの動的情報をも与えてくれる得がたい実験手段である。

メタ磁性転移：

一部の反強磁性体では、外部からかけた磁場の強さがある臨界磁場に達すると磁化が急激に増加する現象が見られる。これをメタ磁性転移と呼ぶ。また、類似の磁化のジャンプは常磁性状態を基底状態に持つ物質においても観測されることがあるがその起源には未解明の部分が多い。