

福岡工業大学 機関リポジトリ

FITREPO

Title	規則磁性体の緩和過程と非平衡相転移に関する動的モンテカルロシミュレーション
Author(s)	加藤 友彦
Citation	福岡工業大学研究論集 第40巻第1号 P1-P8
Issue Date	2007-9
URI	http://hdl.handle.net/11478/935
Right	
Type	Departmental Bulletin Paper
Textversion	Publisher

Fukuoka Institute of Technology

不規則磁性体の緩和過程と非平衡相転移に関する 動的モンテカルロシミュレーション

北 崎 保 (電子情報工学専攻)
加 藤 友 彦 (電子情報工学科)
久 保 英 範 (電子情報工学科)

Dynamical Monte Carlo Simulation on Relaxation Process and Non-equilibrium Phase Transition in Random Magnetic System

Tamotsu KITAZAKI (Graduate School of Information Electronics)

Tomohiko KATO (Department of Information Electronics)

Hidenori KUBO (Department of Information Electronics)

Abstract

The relaxation process of a random magnetic system and its time dependent phase transition are investigated in a time dependent Monte Carlo simulation. It is found in the relaxation process that the present disordered system exhibits the extended exponential decay, and asymptotically approaches to the usual exponential decay with increasing temperature. The time dependent order parameters are calculated in the function of the temperature for several concentrations of the magnetic atoms and these results are found to be in good agreement with the results of an recent NMR spin echo experiment on $\text{Mn}_x\text{Cd}_{1-x}(\text{HCOO})_2 \cdot 2(\text{NH}_2)_2\text{CO}$ by Kubo et. al.

Keywords: *random magnetic mixture, dynamical Monte Carlo simulation, extended exponential relaxation, non-equilibrium phase transition*

1. 序 論

磁性原子が不規則に配列する磁気混晶の相転移は、単原子結晶及び規則的配列の化合物の場合と異なり、秩序変数が明確に消失せず、緩やかな転移を示す。この現象は緩和時間が観測時間よりも長くなるための非平衡現象であると考えられる。この研究では不規則磁性体の緩和過程の解析と秩序変数の観測時間による変

化をシミュレーションにより計算する。モデルとして、二次元正方格子に磁性原子と非磁性原子がランダムに配置された磁気混晶の系を対象として考える。最近接格子間の相互作用のみ考慮するイジングスピンモデルを設定し、動的モンテカルロシミュレーションの手法を用いて物理量の計算を行った。この研究は大澤の修士論文¹⁾の結果をより精密にしたものである。

計算結果を $\text{Mn}_x\text{Cd}_{1-x}(\text{HCOO})_2 \cdot 2(\text{NH}_2)_2\text{CO}$ に対する NMR のスピンエコーの実験²⁾ (図 1-1) と比較する。

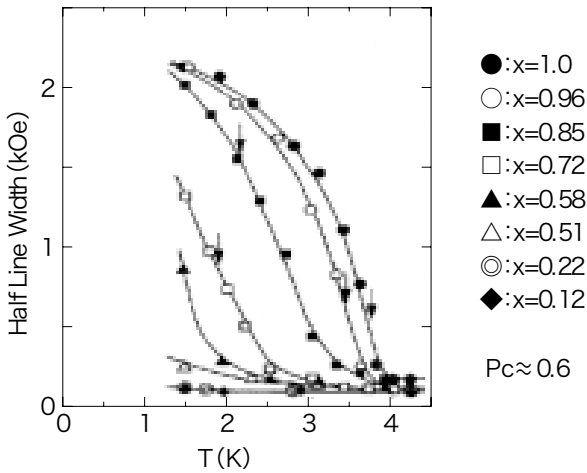


図1-1 希釈系 $Mn_xCd_{1-x}(HCOO)_2 \cdot 2(NH_2)_2CO$ の18MHzでのプロトンの磁場中スペクトルの観測結果

2. 対象モデルとモンテカルロシミュレーションの方法

2.1 混晶系二次元イジングモデル

本研究では、二次元正方格子に磁性原子と非磁性原子を不規則に配置する系を対象としている。そのモデルとして、最近接格子相互作用のみを考慮するイジングスピンモデル(図2-1)を想定した。イジングモデルとは、磁性原子のスピン S が上向き ($S=1$) と、下向き ($S=-1$) の2種類の状態(図2-2)を取るモデルのことである。

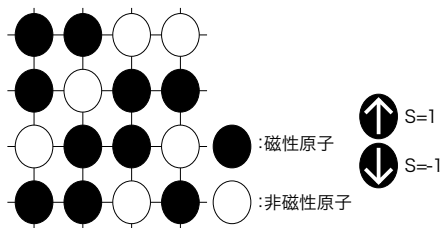


図2-1 イジングモデル 図2-2 磁性原子スピン

モデルハミルトニアン H は

$$H = -J \sum S_i S_j$$

となる。 J は交換相互作用であり和は最近接サイト間の対についてとるものとする。

$Mn_xCd_{1-x}(HCOO)_2 \cdot 2(NH_2)_2CO$ は反強磁性であるが、イジングモデルでは本質的に強磁性と同じであるので簡単のため J を正とした。

2.2 動的モンテカルロ法

通常のモンテカルロシミュレーションは、実時間に対応していないが、動的モンテカルロ法は遷移確率を利用することにより実時間に対応させることができる。

・遷移時間

まず時間 $t=0$ で、系がある状態 i であり、系の性質から状態 i は状態 f_1, f_2, \dots, f_n のいずれかに遷移することが可能であるとする。その遷移確率(単位時間当たりの遷移数)を、 $W_{i \rightarrow f}$ とする。いずれかの遷移が起こる遷移確率 W は、

$$W = \sum_{j=1}^n W_{i \rightarrow f_j}$$

で与えられる。

次に確率論的に考えるため、同等の系を N 個考える。 N 個のうち、時間 t で状態 i にとどまっている系の数を $n(t)$ とする。 $n(t)$ は次式を満たす。

$$\frac{dn(t)}{dt} = -W \times n(t)$$

一般には W は系の状態を通して t に依存するが(例: 電気伝導の問題における散乱確率)、スピン系の場合には時間に依らない。上式を積分すると次のようになる。

$$n(t) = N \times e^{-Wt}$$

ここで、遷移時間 t_c と一様乱数 r との対応関係を考える。まず、時間 t まで遷移せず、 t で始めて遷移する確率 $P(t)$ は

$$P(t) = \frac{n(t)}{N} W = e^{-Wt} \times W$$

で与えられる。

一つの系が時刻 t_c で消滅する確率は、

$$r(t) = \int_0^t P(t') dt' = \int_0^t W \times e^{-Wt'} dt' = 1 - e^{-Wt}$$

で与えられ、図2-3のように r に $[0, 1]$ 一様乱数を対応させることができる。

$$r = 1 - e^{-Wt_c}$$

$$t_c = \frac{1}{W} \log \frac{1}{1-r} \quad (0 < r < 1)$$

上式を用いて乱数 r により遷移時間 t_c を決めることができる。本シミュレーションでは $1-r$ を r と置き換えた。

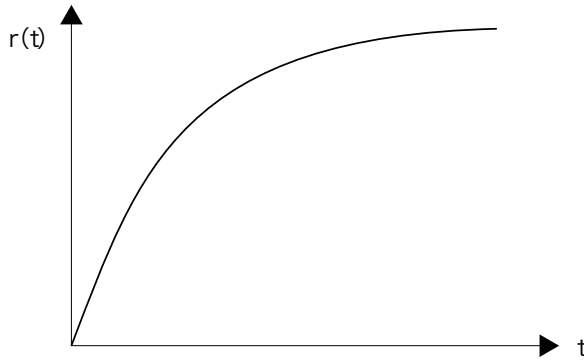


図2-3 乱数と遷移時間の関係

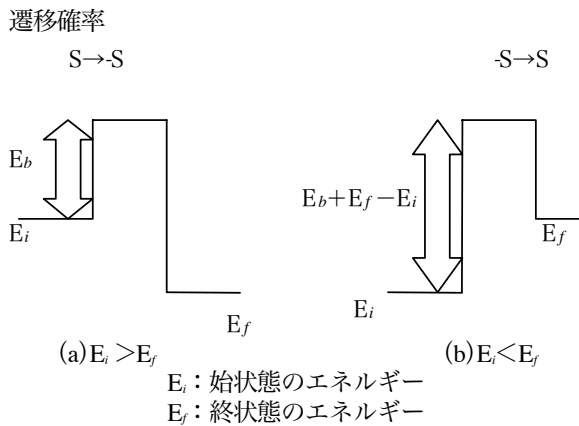


図2-4 遷移における障壁

スピンの S から -S に変わる遷移確率 W は次のように求めた。

まず、 $E_i > E_f$ の場合 (図2-4 (a)) では

$$W = f \exp\left[-\frac{E_b}{k_B T}\right]$$

で与えられると仮定した。ここで E_b は一般に遷移の過程における障壁エネルギー、 f は遷移過程の1秒当たりの頻度を表す。但し、スピン系においては中間状態は考えられないので、

$$E_b = 0$$

とした。

$E_i < E_f$ の場合 (図2-4 (b)) については、詳細釣り合いの原理を満足するという要請から、

$$W = f \exp\left[-\frac{E_b + E_f - E_i}{k_B T}\right]$$

のように与えられる。

頻度 f は格子振動の平均エネルギーに対応すると仮定した。対象とする温度 T がデバイ温度 Θ_D より高い

温度領域では

$$hf \cong 3k_B T \quad h: \text{プランク定数}$$

Θ_D より十分低い温度領域では、

$$hf = \frac{3\pi^4}{5} k_B T \left(\frac{T}{\Theta_D}\right)^3$$

の式から f を算出する。今回のシミュレーションの対象とした物質 $\text{Mn}_x\text{Cd}_{1-x}(\text{HCOO})_2 \cdot (\text{NH}_2)_2\text{CO}$ のデバイ温度は $\Theta_D = 128\text{K}$ である。

3. 計算結果

3.1 磁気モーメントの緩和過程の解析

磁化 $M(t)$ と t の間には、下記のような引き伸ばされた指数緩和と呼ばれる関係が知られており、これを利用して結果を整理する。

$$M(t) = \exp\left[-(t/\tau)^\beta\right] \quad (3-1)$$

なお、 β が1の場合は、通常の指数緩和となる。

上式を変形すると、

$$\log\{-\log(M(t)/M_0)\} = \beta \log t - \beta \log \tau$$

$$Y = \log\{-\log(M(t)/M_0)\}$$

$$X = \log t \quad C = -\beta \log \tau$$

$$Y = \beta X + C \quad (3-2)$$

となり、直線の傾きから β を求めることができる。

β が分かればさらに、

$$\exp(1/\beta)[\log\{-\log(M(t)/M_0)\}] = t/\tau$$

$$Y' = \exp(1/\beta)[\log\{-\log(M(t)/M_0)\}]$$

$$Y' = (1/\tau)t \quad (3-3)$$

となり、直線の傾きから τ を求めることができる。

図3-1は磁性原子濃度60%、 $T=2.00[\text{K}]$ での動的モンテカルロシミュレーションの結果である。まずこれについて通常の指数緩和

$$\log M(t)/M_0 = -(1/\tau)t$$

に対応するプロットをしたものが図3-2である。この図からわかるように、全く直線に乗っていない。次にこれを式(3-2)の変数でプロットしたものが図3-3である。この場合はよく直線に乗っているの引き伸ばされた指数緩和であると結論される。ここで $\beta=0.43$ 、 $\tau=1.5 \times 10^{-5}$ と決定された。

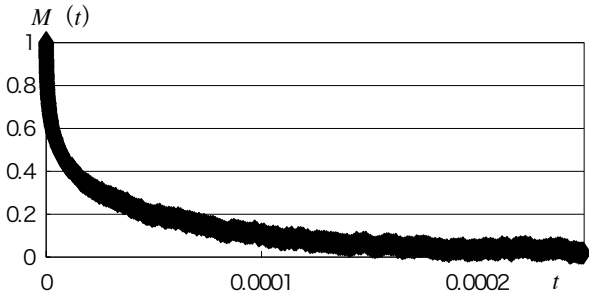


図3-1 濃度60%, $T=2.00$ [K]における磁化の変化
縦軸は磁化率 $M(t)$ 、横軸は実時間 t [s]である。

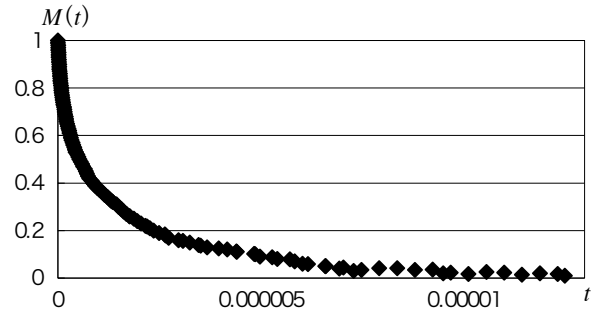


図3-4 濃度60%, $T=2.5$ [K]における磁化の変化

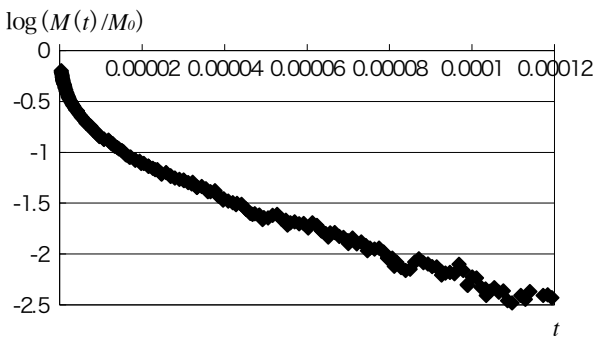


図3-2 図3-1の $\log(M(t)/M_0)$ - t によるプロット

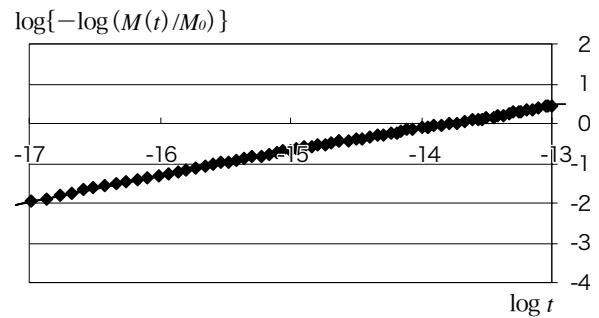


図3-5 図3-4の式(3-2)によるプロット

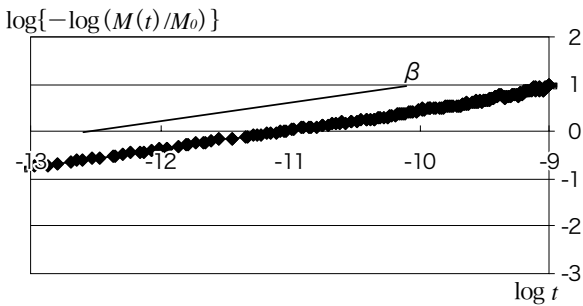


図3-3 図3-1の式(3-2)によるプロット

図3-4、3-5は濃度60%, $T=2.5$ [K]での結果である。 $\beta=0.59$, $\tau=1.0 \times 10^{-6}$ である。同濃度での $T=2.0$ [K]の場合に比べ、 β は大きく、 τ は小さくなっている。

同様のことを濃度50%、60%、70%、80%、90%、100%について行ったがいずれも引き伸ばされた指数緩和のプロットでよく直線に乗った。この中で特に濃度100%、 $T=7.0$ [K]の場合の結果を図3-6と図3-7に示す。この場合の $\beta=1.03$, $\tau=2.3 \times 10^{-9}$ となった。 β がほぼ1となるので、この場合は通常の指数緩和となっていることが分かる。

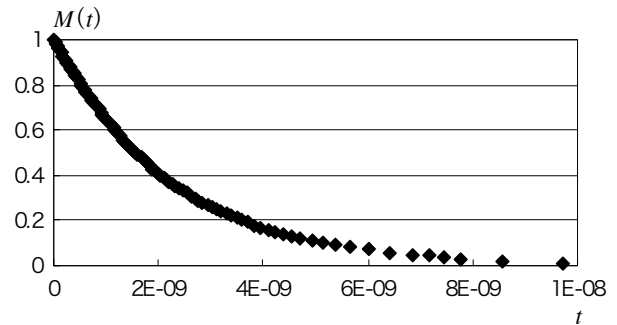


図3-6 濃度100%, $T=7.0$ [K]における磁化の変化

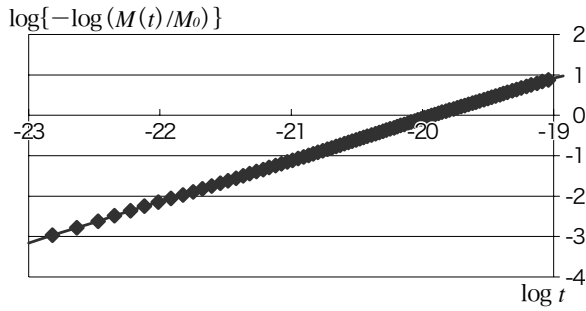


図3-7 図3-6の式(3-2)によるプロット

図3-8は各濃度における β の時間変化を表したものである。高温になるにつれて通常の指数緩和に近付いている。また、濃度が高くなるにつれて、 β が大きくなり始める温度が高くなり、 β が推移する温度の幅が小さくなる。

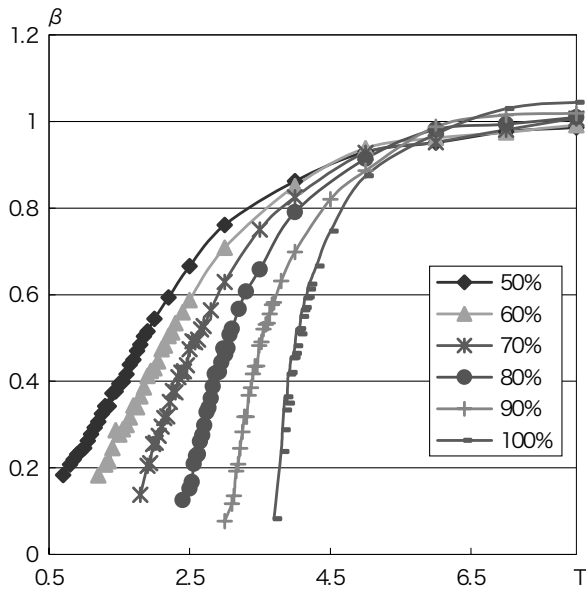


図3-8 各濃度における β の温度変化

図3-9は各濃度における $1/\tau$ を表したものである。 $1/\tau$ が漸近的に0に近づく結果となっているが、これはシャープな相転移が存在しないことと対応している。

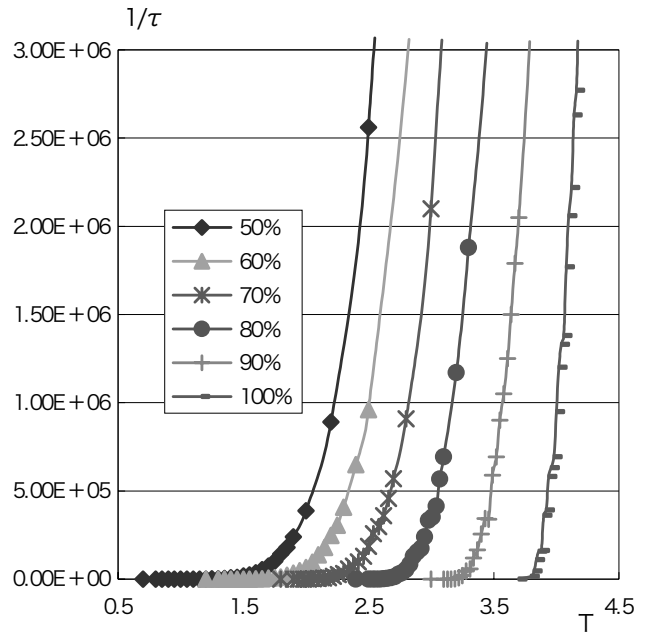


図3-9 各濃度における $1/\tau$ の温度変化

3.2 有限の観測時間における磁化

$\text{Mn}_x\text{Cd}_{1-x}(\text{HCOO})_2 \cdot 2(\text{NH}_3)_2 \cdot \text{CO}$ に対する NMR のスピネコーの実験²⁾(図1-1)に対応する計算を行った。各スピンの時間 t 内の平均 $\langle S_i \rangle_t$ を各温度において、NMRの実験条件に対応すると考えられる色々な観測時間について計算した。これを度数分布に表し、この分布から2乗平均の平方根

$$\sqrt{\langle \langle S_i \rangle_t^2 \rangle_i} \equiv \bar{S}$$

を求めた。この量がスピネコーで測定されるオーダーパラメータに対応すると考えられる。

図3-10は濃度60%、温度 $T=2.00[\text{K}]$ における $\langle S_i \rangle_t$ である。観測時間が短い時は ± 1 付近が目立っているが、観測時間が長くなるにつれて0付近を示すものが増える。図3-11でも同じ傾向が見られるが、その変化はより顕著である。

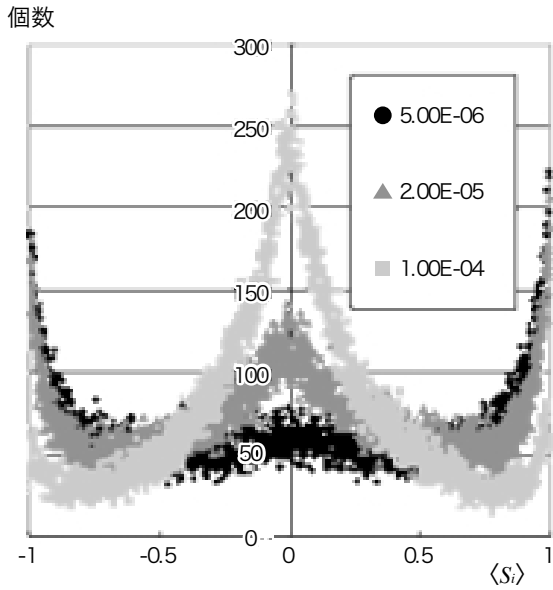


図3-10 濃度60%、温度 $T=2.00$ [K]における $\langle S_i \rangle$ の個数
横軸は $\langle S_i \rangle$ 、縦軸はその状態を示したものの個数
横軸は2000分割している。
各グラフは各観測時間[s]に対応している。

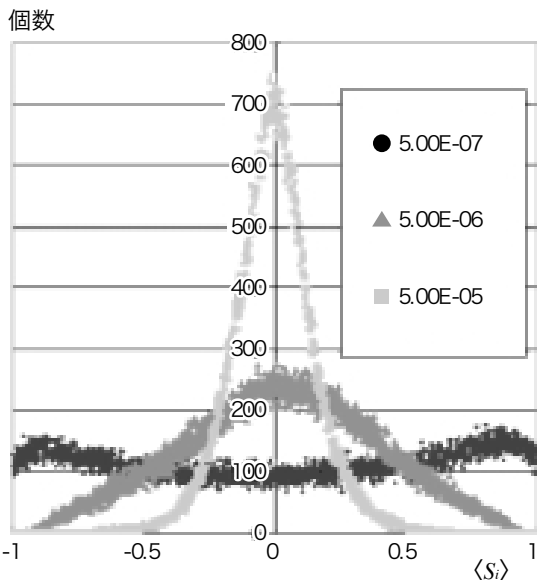


図3-11 濃度90%、温度 $T=3.50$ [K]における $\langle S_i \rangle$ の個数

以下は各濃度における \bar{S} の温度変化である。観測時間が短いほど緩やかな相転移を示す。また、100%に近づくにつれて、急な変化を示すようになる。

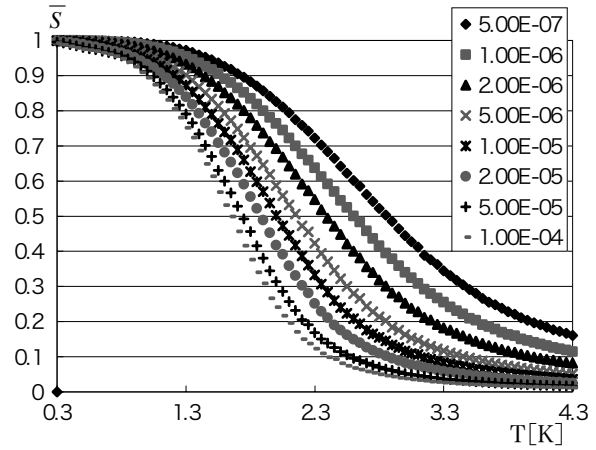


図3-12 濃度50%における \bar{S} の温度変化
横軸は温度 T [K]、縦軸は \bar{S} 。
各グラフは各観測時間[s]に対応している。

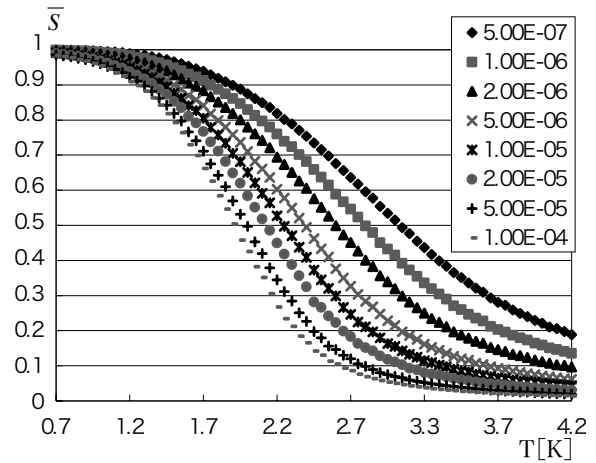


図3-13 濃度60%における \bar{S} の温度変化

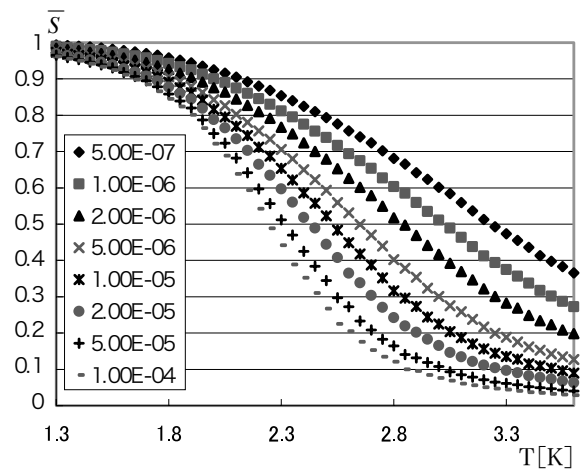


図3-14 濃度70%における \bar{S} の温度変化

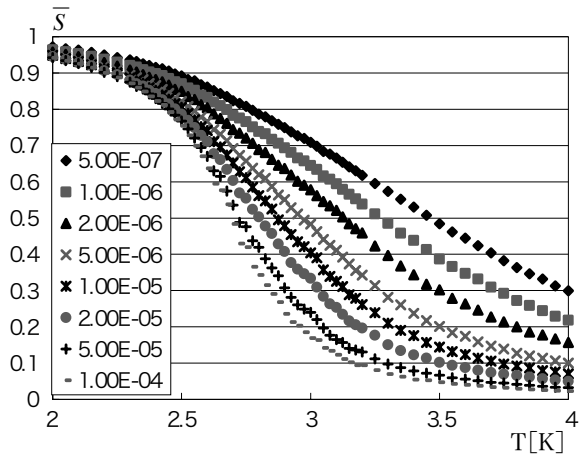


図3-15 濃度80%における \bar{S} の温度変化

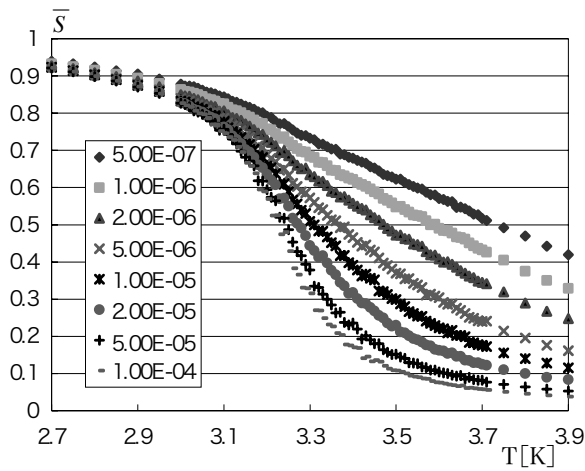


図3-16 濃度90%における \bar{S} の温度変化

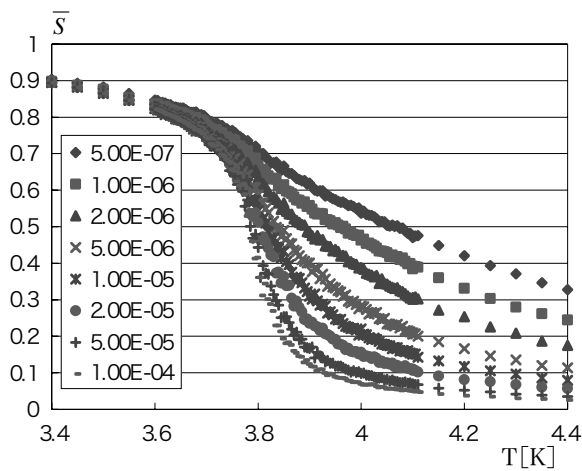


図3-17 濃度100%における \bar{S} の温度変化

図3-18は観測時間を変えた場合のNMRのスピンエコーの実験結果³⁾である。濃度100%の時は観測時間(40 μ sと90 μ s)によって結果はほとんど変わらないが、89%のときは観測時間(40 μ sと90 μ s)の違いによってわずかに差が見られる。図3-19はこの実現条件に対応させたシミュレーションの結果である。NMRの実験の傾向をよく再現している。

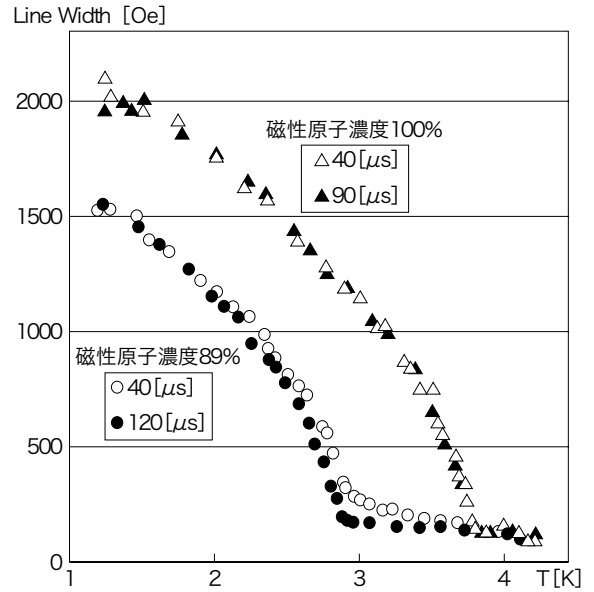


図3-18 NMRのスピンエコーの実験³⁾

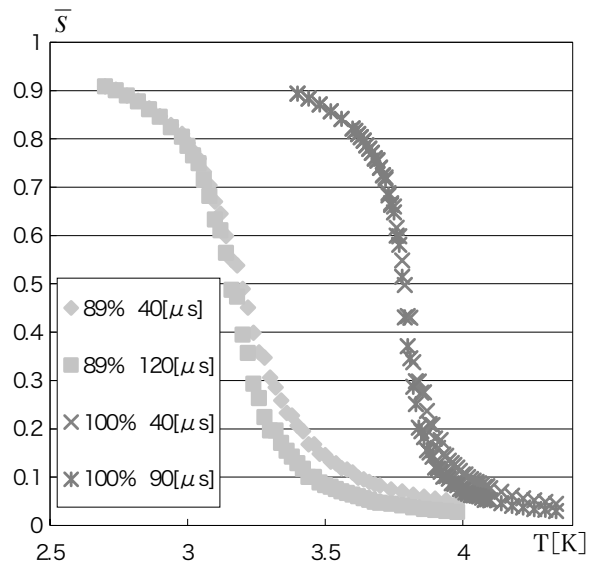


図3-19 実験条件に対応させた \bar{S} の温度変化

4. 結 論

動的モンテカルロシミュレーションにより以下のことが明らかになった。

(1) 緩和過程

- ・各濃度、各温度の全般に渡って引き伸ばされた指数緩和になっている。
- ・ β は低温では1より小さく、高温では1に近付き通常の指数緩和になる。
- ・ $1/\tau$ は低温に向かって漸近的に0に近づく。これはシャープな相転移が存在しないことを示している。

(2) 有限の観測時間における磁化

臨界濃度 ($\approx 60\%$) 近傍で緩やかな相転移が顕著に

なる。

観測時間によって相転移の緩やかさが変わる。
この結果は NMR の半定量的に一致している。

この論文の内容の一部は既に文献⁴⁾に発表した。

参 考 文 献

- 1) 大澤嘉範 磁気混晶のグリフィス相における相転移の研究 福岡工業大学修士論文 2004年2月12日
- 2) K. Zenmyo, H. Kubo, M. Tokita K. Takeda and K. Yamagata, J. Magn. Magn. Mater. 277(2004)281.
- 3) H. Kubo, K. Zemmyo, T. Kato and Yamagata, J. Magn. Magn. Mater. 310(2007) e528-e530.
- 4) T. Kato, Y. Ohsawa, H. Kubo and K. Zenmyo, J. Magn. Magn. Mater. 310(2007) e531-e533.