

散関係を出すことに成功した。

我々は、このようなMgに隣接した $\text{Co}^{2+}$  spinの localized modeを調べるためにヘリウム温度で電子スピン共鳴の観測を行った。この結晶の交換相互作用が大きいため、波長が119  $\mu\text{m}$ の $\text{H}_2\text{O}$ レーザーとパルス強磁場が使われた。最初 $x = 0.3$ の混晶について測定を行ったが吸収が観測されなかった。次に、 $x = 0.11$ のサンプルについて行ったところ非常に幅の広い吸収が磁場310 KOeのところに観測された。これを周波数-磁場特性に描いてみると、図1のようになる。

ゼロ磁場でのエネルギーは中性子回折の実験から得られたものである。中性子回折では、 $x = 0.3$ のサンプルでMgが二個あるいは三個配位したものの bound stateも観測されているが、我々の実験では一個配位したものだけである。図1よ

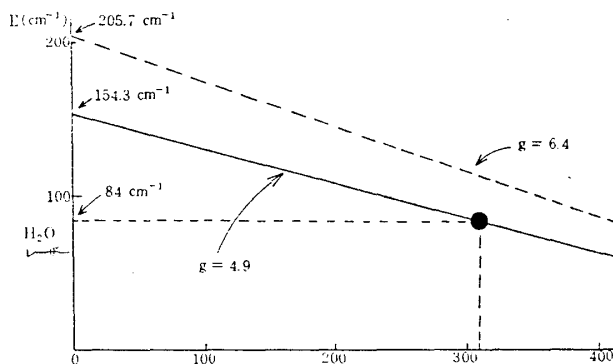


図1.

り $g$ 値が $g = 4.9$ と求められるが $\text{Rb}_2\text{CoF}_4$ で予想されている $g = 6.4$ にくらべて若干小さい。しかしこの6.4という値は高温での帯磁率から求められたものであり必ずしもこだわる必要はない。またゼロ磁場で遠赤外分光も行ってみたが全体に格子振動による吸収が大きく bound stateの励起に伴う吸収は、判別できなかった。たまたま $90\text{ cm}^{-1}$ のところに巾約 $40\text{ cm}^{-1}$ のウィンドウがあり $\text{H}_2\text{O}$ レーザー( $84\text{ cm}^{-1}$ )での測定に好都合であった。

### $\text{K}_2\text{Ni}_{(1-x)}\text{Co}_x\text{F}_4$ 系の相転移と磁気エネルギー

東工大 理 飯尾 勝 矩  
兵藤 博 信  
永田 一 清

2次元 Heisenberg スピン系反強磁性体は、僅かな Ising 性 (1 イオン異方性, 双極子相

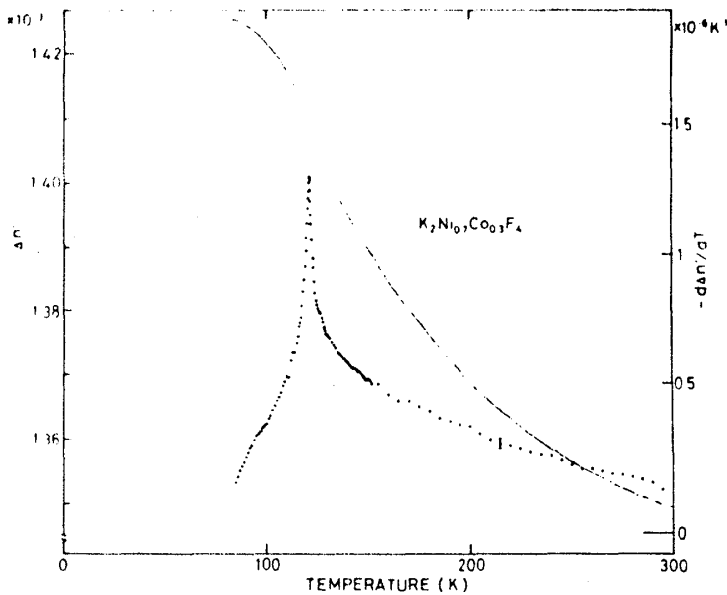
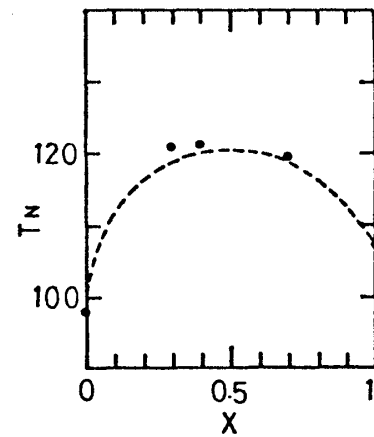
ランダムスピン系の相転移

相互作用および異方性交換相互作用など)が引き金となって相転移を起す。したがって、その臨界領域では Ising 性を反映したスピン相関が観測される。2次元磁性体のこのような相転移の機構を更に明確なものとするために、我々は Heisenberg および Ising 性ボン드가ランダムに混在する 2次元 Heisenberg-Ising 混晶系の臨界現象を調べる目的で、 $K_2Ni_{(1-x)}Co_xF_4$  系の  $x = 0, 0.3, 0.6, 0.7, 1$  の試料について、Néel 点、磁気エネルギーの濃度依存性を光複屈折効果により測定した。光領域の誘電率の実数部分を記述する。磁性イオンのスピン依存電子分極率は最隣接スピン対からの寄与が支配的なため、光複屈折はスピン系の最隣接相関関数  $\langle S_i S_j \rangle$  に比例し、したがって、その温度微分は磁気比熱と対応する。特に、直接に磁気エネルギーの温度依存性を、比較的格子の妨げなしに知ることができる点は、比熱測定にないこの光学的測定の特色であり、スピン相関を知るうえにユニークな手法といえる。

実験は波長  $0.6328 \mu m$  の He-Ne レーザーを光源とし、偏波面変調法により、ユニバーサル・ポーラリメータを用いて、壁開C板に対して  $45^\circ$  の入射角で複屈折を測定した。混晶系の一方の極限である  $K_2NiF_4$  では、Heisenberg 系に特有な短距離秩序の発達を示す複屈折  $\Delta n$  の変化が高温から現われ、複屈折の温度微分  $-d\Delta n/dT$  は  $130 K$  付近に広い山、 $T_N = 98.3 \pm 0.1 K$  に小さい鋭い山が現われる。他方の極限となる  $K_2CoF_4$  では、前者に現われた短距離相関関数の高温の裾は削られ、Néel 点  $T_N = 107.42 \pm 0.02 K$  をはさんだ  $|T - T_N|/T_N < 7.5 \times 10^{-2}$  の領域で  $\Delta n$  は  $-|T - T_N| \log |T - T_N|$  の対称対数異常を示す。 $-d\Delta n/dT$  は  $-\log |T - T_N|$  の対称対数発散の鋭いピークを持つ。 $K_2NiF_4$  で見られた高温側での広い山は消失する。

一方、これらの混晶系では、図 1 に示すように、 $x = 0.3$  の場合、短距離秩序は高温から発達するが、 $-d\Delta n/dT$  には  $K_2NiF_4$  で見られた広い山は現れず、 $|T - T_N|/T_N < 5.7 \times 10^{-2}$  の範囲で ( $T_N = 121.16 \pm 0.02 K$ )、対数発散を示す。 $T_N$  は  $K_2NiF_4$ 、 $K_2CoF_4$  よりも高温側に移動する。混晶の結果をまとめると、Co 濃度の増大に伴って、短距離相関関数の高温側の裾は次第に抑えられ、 $T_N$  をはさんだ対数異常の領域は広がる。しかし、 $x = 0.7$  の場合はかなり異常で、 $\Delta n$  にはこれまで見られなかった非対称な対数異常が現われる。各 Co 濃度に対して  $T_N$  をプロットしたものが図 2 で、純粋な系よりも高温側に転移点がある。

Pełkalski は<sup>1)</sup>、Heisenberg-Ising 混晶系に関して、Heisenberg 性および Ising 性の 2 種

図 1.  $K_2Ni_{0.7}Co_{0.3}F_4$  の複屈折図 2.  $T_N$  の濃度依存性

類のボンド  $J^H/J^I$  が分布する quenched ボンドモデルの高温展開法を扱い、 $J^H/J^I$  をパラメーターにして、臨界温度、帯磁率の臨界指数  $\gamma$  の濃度依存性を求めている。それにより  $S=1$  の Heisenberg および Ising スピンの混晶の  $T_N$  の濃度依存性を求めると、 $x=0, 1$  の両端より中間濃度では転移点が上昇することが導かれ、ほぼ実験と一致する。また、 $\gamma$  については Heisenberg 系の値と Ising 系での値を結ぶ濃度依存性曲線に  $x=0.7$  付近で  $\gamma$  の極小値があることが予想されている。これは  $K_2Ni_{0.3}Co_{0.7}F_4$  の  $\Delta n$  に見られる。非対称性とも対応する領域にあり、この系がどちらの性格にも属さない相転移の新しい特徴を示している。

## 参 考 文 献

- 1) A. Pekalski: J. Phys. C. **10** (1977) 4785.