

- (1) 強磁性，スピングラスの相転移を示す証拠を実験的に明らかにする。
- (2) 臨界点近傍での磁性の動的性質を明らかにする。

の2点に注目して研究をおこない，次の事柄が明らかになった。磁化 m は相転移点近傍で次のように外部磁場の関数として展開される。

$$m = \chi_0 h + \chi_1 h^2 + \chi_2 h^3 + \dots \quad (1)$$

但し $h = h_0 \sin \omega t$

磁化 m はトランス結合したコイルの2次側起電圧の変化として測定されこれから帯磁率が得られる。一次側交流の高調波成分として χ_1, χ_2 等が求められる。 $T = 8\text{K}$ で発散的な χ_1 が測定され， 3K で消失した。このことは強磁性体への相転移が 8K で生じ， 3K で強磁性体からスピングラスに転移したことを示している。また T_c (8K) 以下の温度領域で，温度ヒステリシスを伴った比熱が観測された。このことは強磁性体領域がスピングラス相との競合のため緩和時間の長い不安定な領域であることを示している。非平衡状態の比熱は，強磁性体からスピングラス相への転移は緩和時間を考慮した，つまり動的な非平衡統計力学として取扱わねばならないことを示しており，今後の研究課題である。一方， $20 \sim 2\text{KHz}$ の周波数範囲での χ_0 の実及び虚数成分の測定から T_c で 7m second 程度の長い緩和時間になるが， T_c 近傍での緩和時間に分布を導入した変形 Debye モデルにより説明されることがわかった。この解析により得られた T_c は非線形帯磁率の結果と一致している。

5. TGSe の三重臨界点近傍における電氣的弾性的研究

武内喜則

○序

TGSe [セレン酸三グリシン， $(\text{NH}_2\text{CH}_2\text{COOH})_3\text{H}_2\text{SeO}_4$] は，高圧下で相転移次数が2次から1次へと変化するとされている。強誘電体の相転移がよく記述することのできる下式のような自由エネルギーの分極 P での展開式を考えれば，相転移次数を決定するのは，4乗

$$G = G_0 + 1/2 a P^2 + 1/4 b P^4 + 1/6 c P^6 - EP$$

の係数 b の符号である。従って、 $b=0$ となる点が、相転移次数の変化する点である。 a 、 b を圧力の関数として、3次元相図 [温度・圧力・電場空間での相図] を描けば、 $b=0$ となる点は、3本の臨界線 [2次相転移線] の交わる三重臨界点であることがわかる。そこでは、通常の臨界現象とは違った特異な臨界現象が期待され、そこでの相転移のふるまいに興味を持たれている。

すでに、いくつかの強誘導電体の電気的性質について、三重臨界点近くでの現象論と実験との比較が為されていて、ほぼ、両者は一致している。しかし、TGS_eについては、それが十分に為されておらず、従って、三重臨界点と圧力の関係が確定しているとは言い難い。我々はまず、電気的測定を行い、その結果と現象論を比較することによって、三重臨界点と圧力の関係、言い換えれば、 b の圧力依存性を調べた。更に、我々は、今まで行なわれていなかった弾性的研究を試み、その結果を電気的測定より得た b の圧力依存性の知識をふまえて考察した。

○実験結果と考察

図1、図2は、自発分極 P_s の4乗の温度依存性、Curie定数の圧力依存性をそれぞれ示した

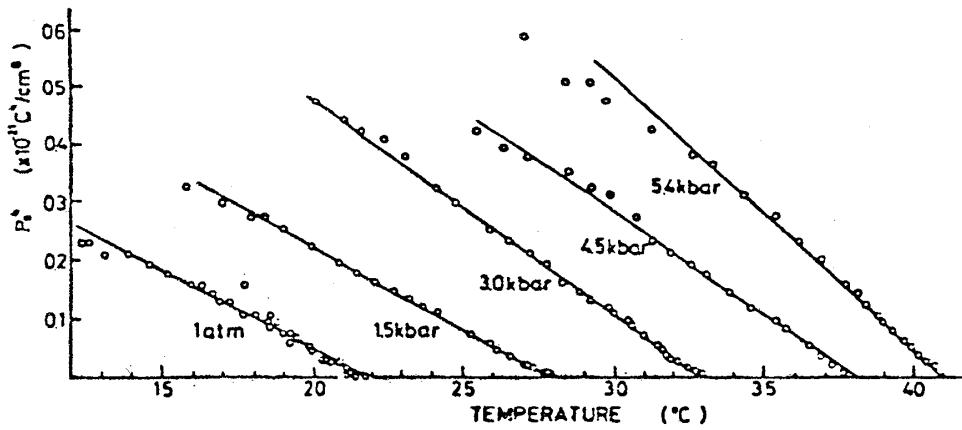


図 1

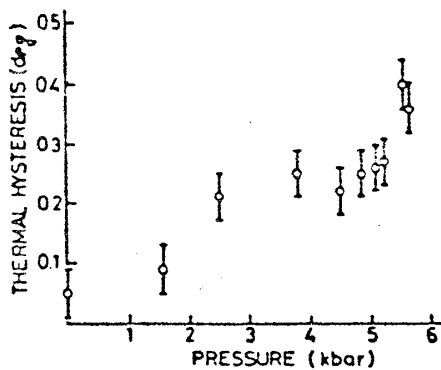


図 2

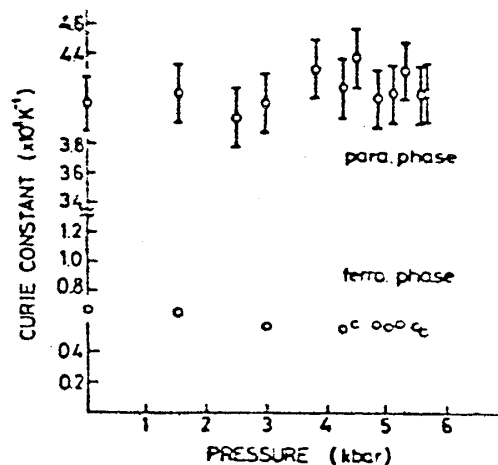


図 3

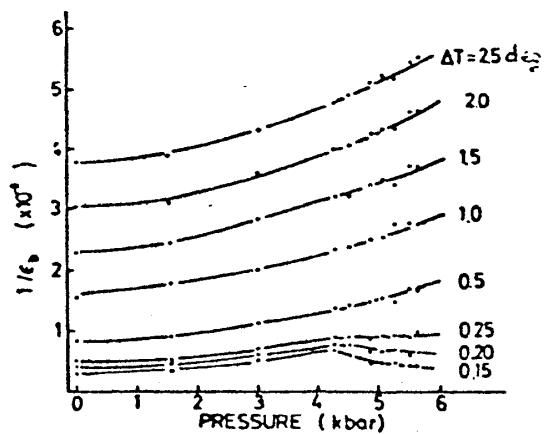


図 4

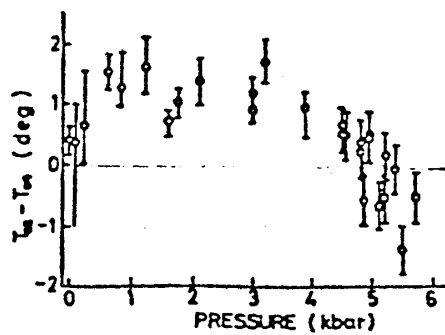


図 5

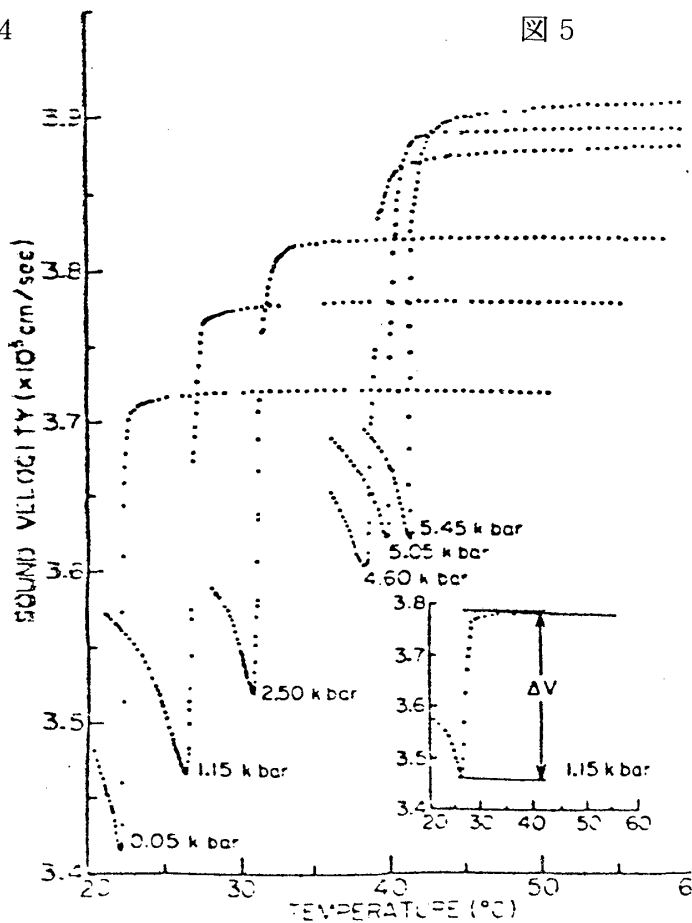


図 6

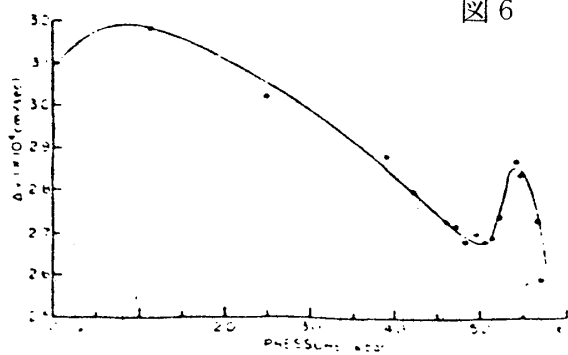


図 7

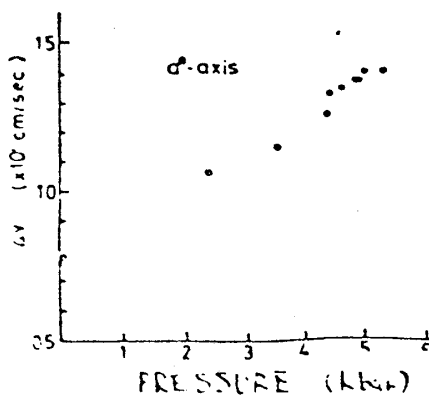


図 8

ものである。これらのグラフより、我々の注目している圧力範囲において、 b がほとんど0であることがわかった。誘電率の測定によって得た温度ヒステリシスの圧力依存性を図3に示す。このグラフは、 b が圧力に対してゆるやかに変化して、転移の次数が1次になっていく様子を示していると思われる。図4は、 $\Delta T = T_{tr} - T$ が等しい温度での逆誘電率の圧力依存性である。これを見ると、1次転移に関係していると思われる逆誘電率の温度変化の激しい温度領域が、4.5 kbar 以上で現われることがわかった。

自発分極の詳しい測定の結果、図2のような $P_s^4 \propto (T_{04} - T)$ の温度依存性を持つ温度領域の他に、 $P_s^2 \propto (T_{02} - T)$ の温度依存性を持つ領域があることがわかった。後者の領域の広さに対応する $(T_{02} - T_{04})$ の圧力依存性を、図5に示す。 $b = 0$ のとき、 $(T_{02} - T_{04}) = 0$ である。従って、図5は、5 kbar に、三重臨界点があることを、示唆している。

図6は、パルスエコー重畳法で測った c 軸方向に進む 10 MHz の縦波の音速の温度依存性の圧力変化を示したものである。図6の小図のごとく、音速の異常部分 ΔV を考えると、その圧力変化は、図7のようになる。図7では、 ΔV が極小をとる圧力と、自発分極の測定でわかった三重臨界点のある圧力が、一致していることに、特に注目すべきである。

ΔV の圧力変化は、強誘電相における圧電結合による音速の異常部分の b の圧力変化に対応した変化に、よるものだと考えられる。1次転移側 (5 kbar 以上) の ΔV の圧力依存性は、現象論的に、 b の変化に対応させて、説明できた。2次転移側で、現象論を考える場合には、今まで無視されてきた6乗の係数 c が TGS_e では重要であることがわかった。 c を考慮すれば2次側でも ΔV の圧力依存性を説明できる。

図8は、 a^* 軸方向に進む 10 MHz の縦波についての ΔV である。 c 軸方向の ΔV の圧力依存性と、 a^* 軸方向のそれとの間には、大きな違いがある。これは、電歪定数と、弾性スティフネスの軸による違いによると思われる。

我々は、自発分極の測定によって、三重臨界点の位置を知ることができた。また、電氣的測定では、あまりはっきりとらえることのできない三重臨界点近傍の b の圧力に対するゆるやかな変化を、超音波測定の精度のよさを背景に、はっきりとらえることができた。