

Fig. 4

5. 絶縁体スピングラス  $Rb_2Mn_{(1-x)}Cr_xCl_4$  の磁性

榆 孝

§ 1. 序 論

最近、ランダム磁性体に関する研究が盛んに行われている。特に、合金系におけるランダム磁性体としてのスピングラス（金属スピングラス）においては、1975年に Edwards と Anderson<sup>1)</sup> によって新しい型の秩序相の存在が示唆され、非常に多くの研究報告がなされている。金属スピングラスの起源は振動型の RKKY 相互作用であるとされているが、これとは異なった機構によってもスピングラスが実現するということが、Matsubara<sup>2)</sup> らの GLP 理論や Oguchi<sup>3)</sup> らの ROP 理論等によって提案された。それは、最近接イオン間の相互作用が支配的な系で、強磁性、反強磁

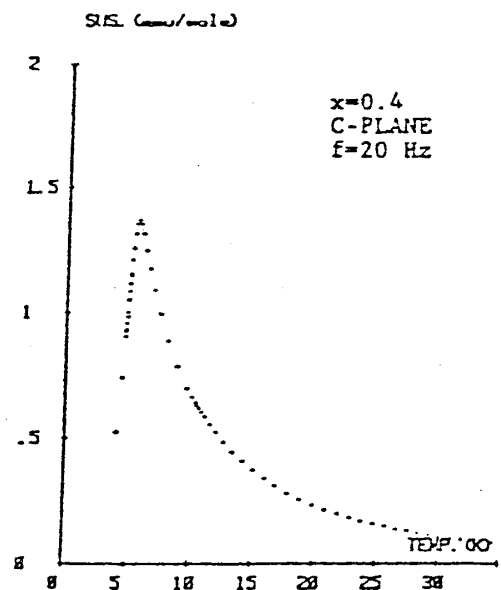


Fig. 1

性交換相互作用が競合する場合に起こり得るというもので、絶縁体の混晶において予想される。しかし、このような系についての実験報告は今のところほとんどなく、bond model において  $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{S}^{4)}$  が報告されているにすぎない。ここで報告する  $\text{Rb}_2\text{Mn}_{(1-x)}\text{Cr}_x\text{Cl}_4$  は、強磁性体  $\text{Rb}_2\text{CrCl}_4$  と反強磁性体  $\text{Rb}_2\text{MnCl}_4$  の絶縁性混晶で、site model 絶縁体スピングラスの最初の実験例<sup>5)</sup> である。

§ 2.  $\text{Rb}_2\text{MnCl}_4$  と  $\text{Rb}_2\text{CrCl}_4$  の結晶構造と磁気的性質

$\text{Rb}_2\text{MnCl}_4$  と  $\text{Rb}_2\text{CrCl}_4$  はともに  $\text{K}_2\text{NiF}_4$ -type の結晶構造を持ち、格子定数もほとんど等しい絶縁性結晶である。 $\text{Rb}_2\text{MnCl}_4$  は約 57K で反強磁性相に、 $\text{Rb}_2\text{CrCl}_4$  は約 52.4K で強磁性相に転移する。

§ 3. 実験方法

1) 試料作製： $\text{Rb}_2\text{Mn}_{(1-x)}\text{Cr}_x\text{Cl}_4$  の単結晶をブリッジマン法で作製した。得られた混晶を用いて以下の実験を行なった。2) 帯磁率測定, 3) 磁化測定, 4) 中性子回折, 5) 高周波帯磁率測定

§ 4. 実験結果

Fig. 1 に  $x=0.4$  における帯磁率の温度依存性を示す。 $\text{Rb}_2\text{Mn}_{(1-x)}\text{Cr}_x\text{Cl}_4$  の中間濃度付近の試料の帯磁率は、温度を下げるにつれて上昇し、ある温度をピークに下降し始める。

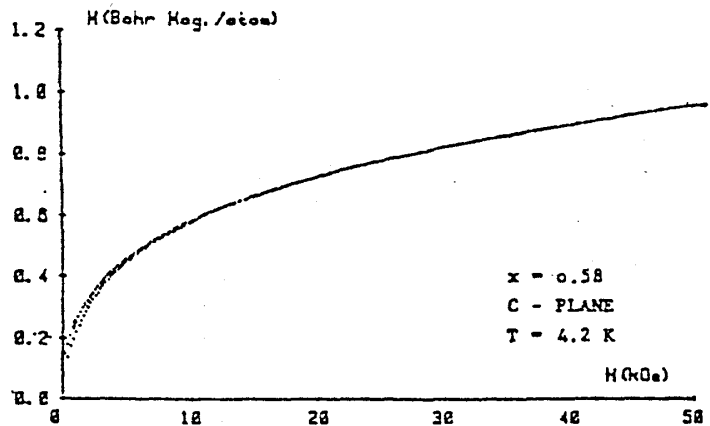


Fig. 2

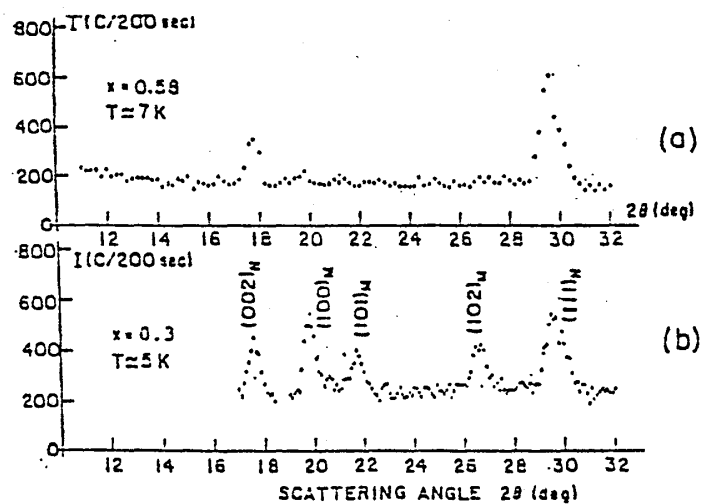


Fig. 3

このように帯磁率の温度依存性にカスプが現われるのは、スピングラスの一つの特徴となっている。Fig. 2 に  $x = 0.58$  の  $c$  面に磁場をかけたときの 4.2K における磁化過程を示す。磁場に対して敏感ではあるが、強磁性のような急激な飽和は示さず、これもまたスピングラスの特徴となっている。Fig. 3 に  $x = 0.3$  と  $0.58$  の低温における中性子散乱パターンを示す。 $x = 0.3$  においては  $\text{Rb}_2\text{MnCl}_4$  と同じ指数のところに散乱が観測されたが、 $x = 0.58$  においては核散乱しか観測されなかった。また、この核散乱の強度は温度変化せず、これらのことから  $x = 0.58$  は低温においては周期的な磁気構造が形成されていないと言える。Fig. 4 に  $x = 0.4$  の高周波帯磁率の温度依存性を示す。これは、低周波で測定した帯磁率の温度依存性と同じように、カスプを持つ。しかし、帯磁率のピークを与える温度 ( $T_f$ ) は高温側にずれている。このように  $T_f$  が測定周波数 ( $f$ ) の増加とともに高温側にずれてゆく傾向は、 $x = 0.3$  から  $0.58$  にわたってみられた。

§ 5. 考 察

上に述べたような実験結果より、 $\text{Rb}_2\text{Mn}_{(1-x)}\text{Cr}_x\text{Cl}_4$  の中間濃度付近の低温においてスピングラス状態が実現していることは、ほぼ明らかになった。これは、強磁性体と反強磁性体の絶

縁性混晶におけるスピングラスとしては、最初の実験例である。また、 $T_f$  の  $f$  依存性において、関係式  $\tau = \tau_0 \exp \{ E / (T_f - T_0) \}$ , (ここで  $\tau = 1/f$ )<sup>6), 7)</sup> が成り立っていることが確かめられた。このことは、系の固有時間  $\tau$  が有限温度  $T_0$  で発散することを意味し、スピングラスへの転移が相転移である可能性を示唆しているものとも考えられる。 $x = 0.5$  の場合 (Fig. 5)

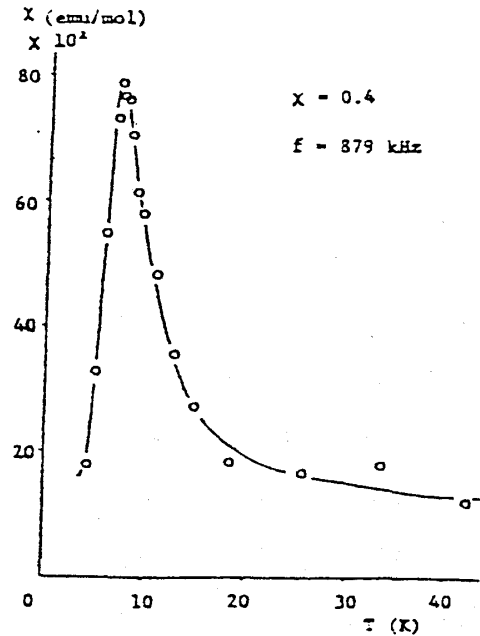


Fig. 4

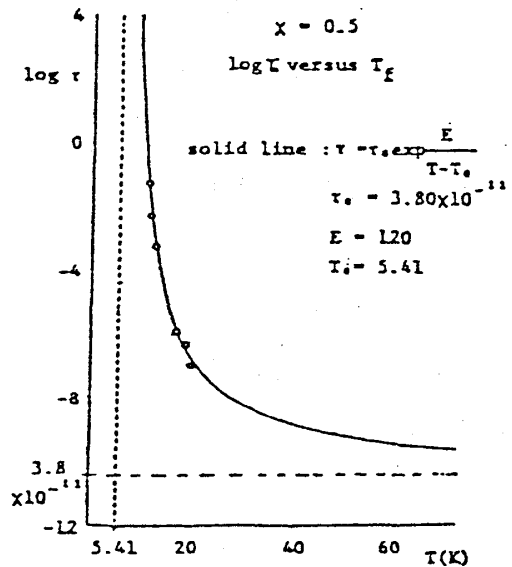


Fig. 5

は  $T_0 \sim 5\text{K}$  で、熱残留磁化の測定から得た結果とも一致した。

## References

- 1) S. F. Edwards & P. W. Anderson : J. Phys. **F5** (1975) 965.
- 2) F. Matsubara & M. Sakata : Prog. Theor. Phys. **55** (1976) 672.  
S. Katsura : Prog. Theor. Phys. **55** (1976) 1049.
- 3) Y. Ueno & T. Oguchi : J. Phys. Soc. Jpn. **40** (1976) 1513.  
T. Oguchi & Y. Ueno : J. Phys. Soc. Jpn. **46** (1979) 729.
- 4) H. Maletta & P. Convert : Phys. Rev. Lett. **42** (1979) 108.  
H. Maletta & W. Felsch : Phys. Rev. **B20** (1979) 1245.
- 5) K. Katsumata, T. Nire, M. Tanimoto & H. Yoshizawa : Phys. Rev. **B24** (1981) No.11.
- 6) J. L. Tholence : Solid State Commun. **35** (1980) 113.
- 7) G. I. Fulcher : J. Am. Ceram. Soc. **8** (1925) 339 and 789.

6. ブリルアン散乱による  $\text{Rb}_2\text{ZnCl}_4$  の研究

山中明生

硫安系強誘電体のうち、 $\text{Rb}_2\text{ZnCl}_4$  は広い温度範囲の不整合相を持つことで興味の持たれる物質である。この物質の高温—不整合—整合 (Normal-Incommensurate-Commensurate : N-inc-C) 逐次相転移は対称性の変化という点から見ると  $\text{K}_2\text{SeO}_4$ ,  $\text{K}_2\text{ZnCl}_4$  とまったく同じである。しかしその相転移における動的性質は、ソフトモードの観測に見られるように個々の物質で大きく異っている。ブリルアン散乱や超音波の測定はその方法が動的なものであるから、音波のふるまいをとおして構造相転移における物質の動的側面を観測する時には強力な手段となり得る。

したがって  $\text{Rb}_2\text{ZnCl}_4$  の高温—不整合相転移で秩序度のゆらぎは音波にどのような影響を与えるか、広い温度範囲の不整合相で音波がどのようなふるまいを示すか、不整合—整合相転移の影響がどのように音波に表われて来るのか等の知見を得ることを目的として、ブリルアン散乱及び超音波の音速測定を行った。