

# リエントラントスポンガラス $Pd_{1-x-y}Fe_xMn_y$ に於ける緩和

北大 理 都 福仁  
東園大 齒 高野 英明

## $Pd_{1-x-y}Fe_xMn_y$ の磁性

リエントラントスポンガラスは強磁性、反強磁性的相互作用の競合した系で常磁性強磁性、スポンガラスの2度の相転移を逐次起こし、スポンガラス転移では強磁性が消失するものと考えられていた。常磁性同様自発磁化はゼロであり、リエントラントスポンガラスの名が付けられている。実験的には図1のように帯磁率の減少、中性子散乱実験によるスポン転移の消失等が強磁性の崩壊を示唆した。しかしメスバウアー分光磁化測定により詳細な実験により、マイクロ凍結状態はもう少し複雑である事が明らかになりつつある(図5参照)。GabayとToulouse<sup>1)</sup>は図2のようにスポン凍結状態は

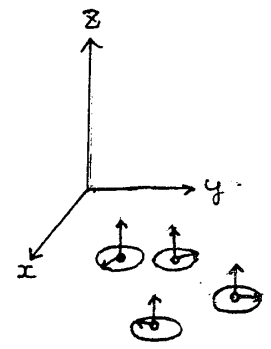
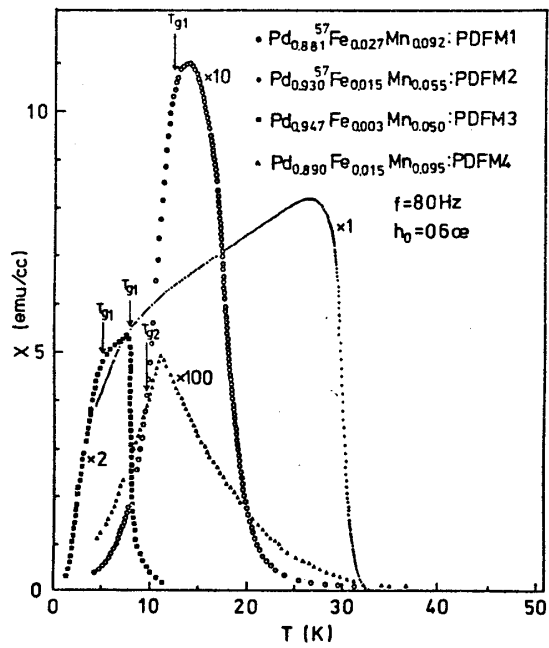


図2 GT-相のスポン凍結状態

Fig. 1. Ac-susceptibility for  $Pd_{1-x-y}Fe_xMn_y$  (PDFM1~4) measured at 80 Hz and at the ac-field amplitude  $h_0=0.60$  Oe. Notations  $T_{g1}$  and  $T_{g2}$  are explained in the text.

z軸方向の強磁性とxy面内のラランダムな凍結を示すxy面内のスポンガラスの共存相(GT-相)が強磁性転移点  $T_c$  の低温側で生ずる(GT-転移)事を理論的に示し、最近、 $AuFe$  (17 at.% Fe, 19 at.% Fe),  $Fe_xNi_{28-x}B_{13}$ ,  $Pd_{1-x-y}Fe_xMn_y$ <sup>2)</sup> 等の物質で実験的に確認されている。 $Pd_{1-x-y}Fe_xMn_y$  の磁性不純物濃度  $x+y$  は約 10 at% であり、この場合には所謂、Giant moment は出現せず  $Mn \sim 5 \mu_B$ ,  $Fe \sim 2 \mu_B$  の磁気モーメントを持つ<sup>3)</sup>。Fe-Fe 及び Mn-Mn は夫々強磁性的及び反強磁性的

結合をしており、Fe-Mnが強磁性的結合であるために  $Pd_{1-x-y}Fe_xMn_y$  は変態系を構成している。この物質の磁化測定は全て field cool 下で行い、地磁気 ( $0.4 Oe$ ) は消磁 ( $1/10^3$  以下) した。

強磁性体、特に不均一な強磁性体の磁化測定には多少注意が必要である。強磁性体の場合外場をゼロにするに domain の形成のために現実には磁化はゼロになる。適当に反磁場を補正し scaling plot (modified Arrott plot) を行うと  $x, y$  の濃度により低温で自発磁化の消失する場合は  $T \approx 0$  に近強磁性体の存在する場合がある事がわかる(図3, 図4参照)。

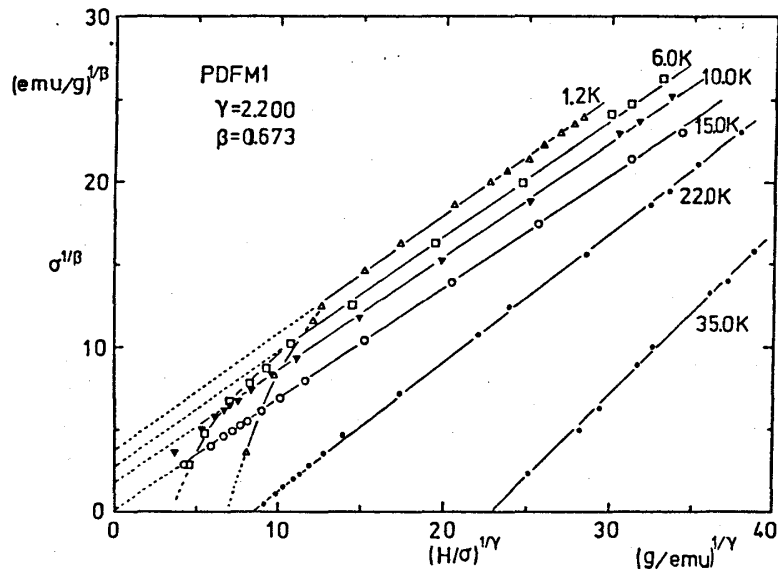


Fig. 3 Arrott Noakes plot ( $\sigma^{1/\beta}$  vs  $(H/\sigma)^{1/\gamma}$ ) for  $Pd_{0.881}^{57}Fe_{0.027}Mn_{0.092}$  (PDFM1).

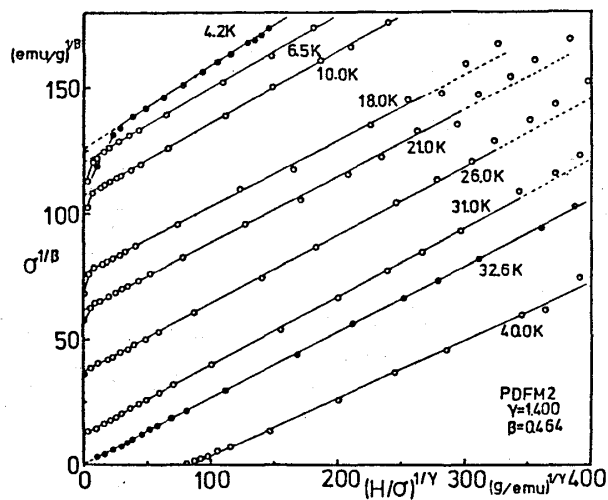


Fig. 4 Arrott Noakes plot ( $\sigma^{1/\beta}$  vs  $(H/\sigma)^{1/\gamma}$ ) for  $Pd_{0.930}^{57}Fe_{0.015}Mn_{0.055}$  (PDFM2).

直線を延長し自発磁化が求められるが、自発磁化の温度変化ではGT転移温度  $T_{GT}$  で何の異常も観測されず<sup>2)</sup>。しかし図1の帯磁率では  $T_{GT}$  は急激な減少を示し始める温度であり、この温度で何らかの磁気的変化がある事がわかる。これを明らかにする為にはメスバウワー分光の実験を行った。図1のPDFM2の試料では  $T_{GT}$  でメスバウワー分光から hyperfine field  $\overline{H}_{\text{eff}}$  の異常な増加が観測され、電子スピン分極の大きさが急に变化した事がわかった。PDFM1の試料では  $T_c$  と  $T_{GT}$  が近い為には  $\overline{H}_{\text{eff}}$  の急な変化はみられなかったが、外場  $H_a = 5 \text{ kOe}$  の下で hyperfine 相互作用で分離したスペクトル線の強度比(図5)の温度変化を測定し  $H_a$  に垂直な方向のスピン成分の分極を確認した(図6)。

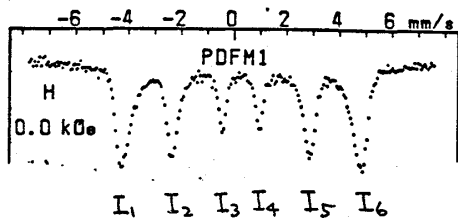


図5 メスバウワースペクトル

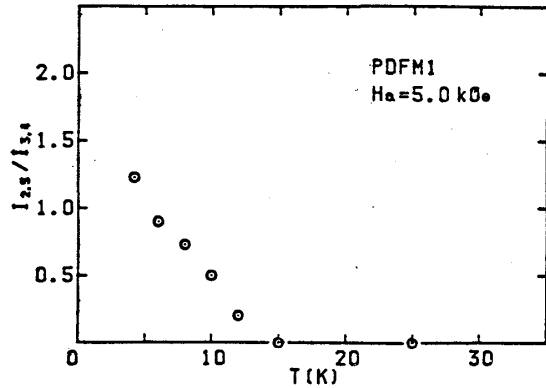


Fig. 6 Area intensity ratio  $I_{2,5}/I_{3,4}$  of Mössbauer spectra of PDFM1 observed under  $H_a = 5 \text{ kOe}$  versus temperature.

メスバウワースペクトルの  $I_{2,5}/I_{3,4}$  の強度比は

$$\frac{I_{2,5}}{I_{3,4}} = \frac{4 \sin^2 \theta}{1 + \cos^2 \theta}$$

で与えられる。但し  $\theta$  は  $\overline{H}_{\text{eff}}$  と入射線との間の角度である。外場  $H_a$  は入射線と線と方向にあり強磁性状態ではスピンは  $H_a$  方向に分極してあり  $I_{2,5}/I_{3,4} = 0$  であるが  $T_{GT}$  で  $H_a$  に垂直な方向のスピン成分が分極する為に  $I_{2,5}/I_{3,4}$  が増大する。以上簡単に紹介した実験から図7の磁気相図が得られた。リエントラントスピングラスでこのような相図を明らかにしたのは始めてであるが、特にGT転移後さらに低温

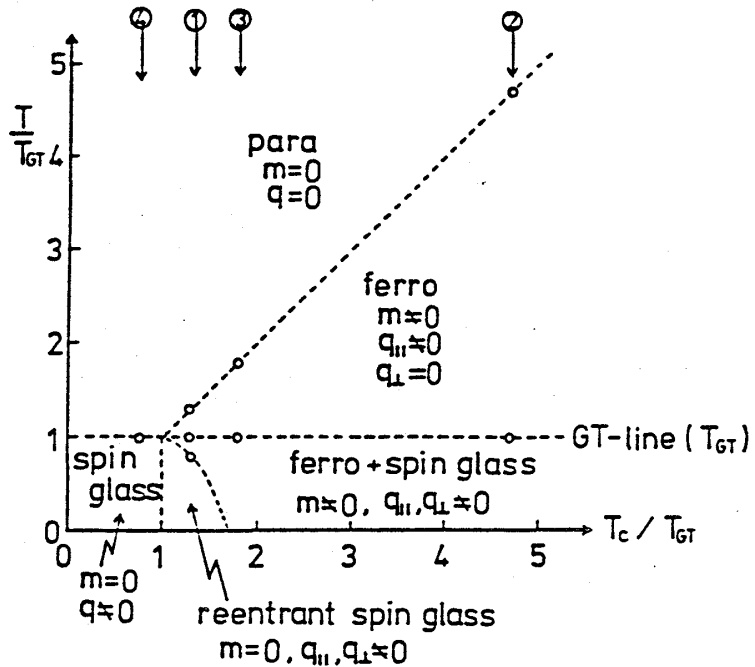


図7  $\text{Pd}_{1-x-y}\text{Fe}_x\text{Mn}_y$  の磁気相図

①, ②, ③, ④ は PDFM 1, 2, 3, 4 を表す。

で強磁性が消失する段階の転移を予子併は、この物質で始めて観測された。<sup>2), 4)</sup>

図7で  $M$  は自磁石化度,  $\beta_{||}$ ;  $\beta_{\perp}$  はスピンガラスのオーダパラメータを示し,  $\beta_{||}$ ,  $\beta_{\perp}$  は  $M$  に平行及び垂直方向の成分を表わす。

$Pd_{1-x}Fe_xMn_y$  における石磁化の緩和

スピンガラスの緩和は転移温度  $T_g$  の高温側と低温側で異なる。  $T \sim T_g$  では石磁化の大きな非線形性のために多緩和型になる。この為、石磁化の緩和は

$$M(t) \sim -\ln t \quad \dots \dots (1)$$

あるいは

$$M(t) \sim -t^{-\alpha} \quad \dots \dots (2)$$

で近似される。 Suzuki & Kubo<sup>5)</sup> の Ising スピン系の強磁性体の場合、  $T = T_c$  では高次の非線形効果のために  $t^{-1/2}$  の緩和に予子事か示され<sup>6)</sup>。 スピンガラスの場合、転移温度  $T_g$  で  $\alpha \sim 1/2$  の power law decay で近似されるが、  $T_g$  より十分低温の長時間域の緩和は (3) の stretched exponential decay で表わされる。

$$M(t) \sim \dots \exp\left[-\left(\frac{t}{\tau_p}\right)^{1-n}\right], 0 < n < 1 \quad \dots (3)$$

より一般的には

$$M(t) \sim \left(\frac{t}{\tau_p}\right)^{-\alpha} \exp\left[-\left(\frac{t}{\tau_p}\right)^{1-n}\right] \dots \dots (4)$$

の power law decay と stretched exponential decay の複合の形で表わされる。<sup>6) 7) 8)</sup>

この場合  $T_g$  近傍では  $n \rightarrow 1$  になり power law decay で支配されるが、低温では stretched exponential で支配されるように予子事か予想される。

残留石磁化の緩和は有限の磁場  $H$  を加えた状態で図8 A点迄温度を下げ、A点で時間  $t_w$   $H$  を保持した後、すみやかに  $H \rightarrow 0$  にする。その後の緩和はこの waiting time  $t_w$  で異なり field cool した状態の石磁化は常に一定であり温度に因しても可逆であるにもかかわらず熱平衡状態を示す予子事か示している。  $t_w \rightarrow \infty$  と共に  $M(t)$  の緩和時間  $\tau_p$  は無限大になり石磁化  $M(t)$  は一定で緩和し予子事か推測される。<sup>9)</sup>

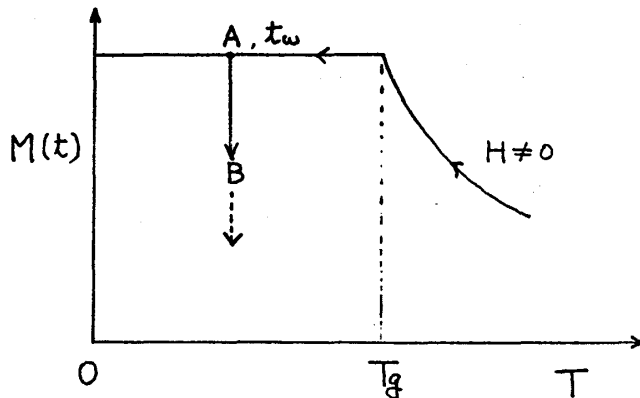


図8 磁場中冷却したときの石磁化曲線

図8のA点で waiting time  $t_w$  後 HE センサーにすると磁化  $M(t)$  は B 点的に減少した後、点線のようにゆっくりと減少する。この緩和が(3)または(4)で近似される。

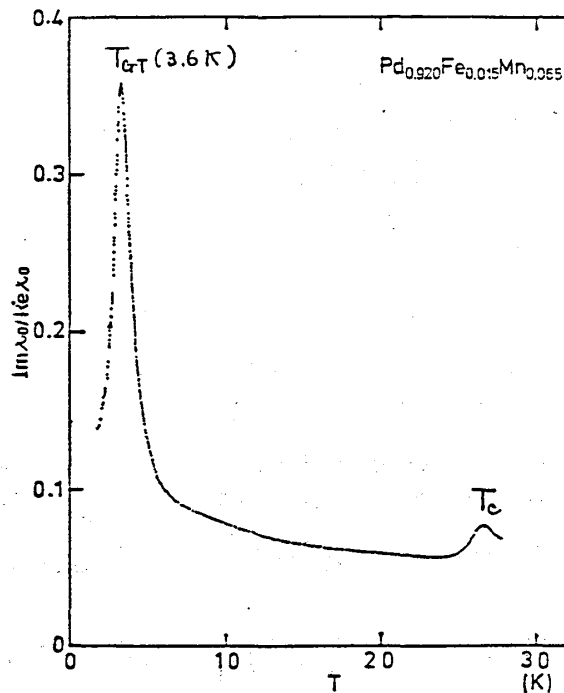


図9  $\text{Im} \chi_0(\omega)$  の温度変化

図9に  $\text{Pd}_{0.920}\text{Fe}_{0.015}\text{Mn}_{0.065}$  の交流帯磁率の虚成分の温度変化を示す。  $T_c$ ,  $T_{GT}$  は夫々強磁性、GT転移温度を示す。  $T_{GT}$  以下では強磁性とスロウガラスが共存する。  $T_c$  以下の温度で緩和過程がどのように変化するかが調べられた。  $T_{GT} < T < T_c$  では(2)での power law decay が比較的よく近似されるように思われる。

図10の(a)(b)(c)からわかるように、  $T_{GT} < T = 8\text{K}$  の  $\log M(t)$  vs  $\log t$  plot は直線であるが、  $T_{GT} \lesssim T = 4.2\text{K}$  では  $t > 10^3\text{sec}$  の長時間域で曲線は上に凸の傾向が出てくる。 上に凸の関数は  $\exp[-(\frac{t}{\tau_p})^{-n}]$  で表わすことができる。  $T_{GT} > T = 1.8\text{K}$  で上に凸の傾向が非常に顕著にあり、むしろ  $t^{-\alpha}$  の関数では近似できない。 この曲線は

$$M(t) = M_0 \left(\frac{t}{\tau_p}\right)^{-\alpha} \exp\left[-\left(\frac{t}{\tau_p}\right)^{-n}\right]$$

$$M_0 = 0.2405 \text{ emu}$$

$$\alpha = 0.0386, \quad \tau_p = 1.1 \times 10^5 \text{ sec}, \quad n = 0.56$$

で近似でき、実線は計算値を示す。

この緩和過程の変化は強磁性全領域では不均一なランダム磁性体ではありけれども、図11の如く1つの free energy minimum からの励起状態からの緩和を考慮する事ができる。  $T_{GT} > T$  では free energy の minima

向の高い energy barrier 障壁  $\Delta E$  があり, minima 間 hopping 型の緩和過程に存在。  
 この緩和過程は無数にあり, 二のような場合に緩和は stretched exponential 型  
 に存在すると思われる。

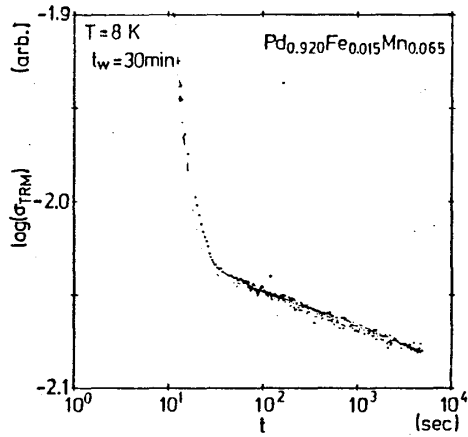


図10(a) 磁化の緩和率  
 $T > T_{GT}$

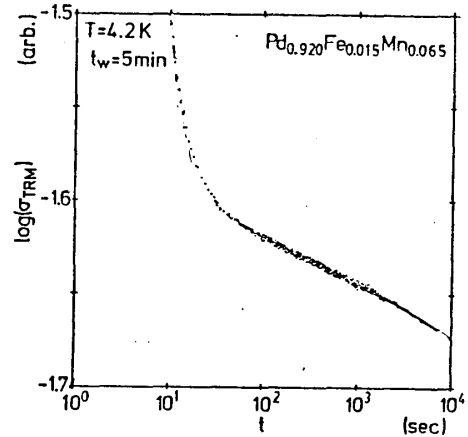


図10(b) 磁化の緩和率  
 $T \sim T_{GT}$

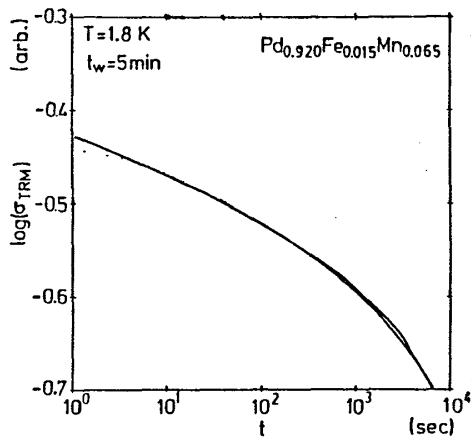


図10(c) 磁化の緩和率  
 $T < T_{GT}$

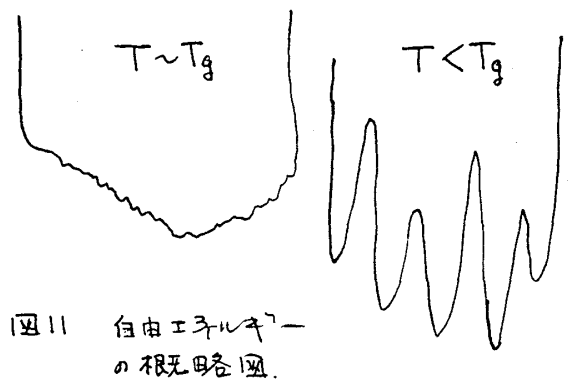


図11 自由エネルギーの概略図。

- 1) M. Gabay and Toulouse : Phys. Rev. Lett. 47 (1981) 201
- 2) T. Sato, T. Nishioka, Y. Miyako, Y. Takeda, S. Morimoto and A. Ito, J. Phys. Soc. Jpn
- 3) H. Takano, T. Nishioka, Y. Miyako, Sugiyama and M. Date, 印刷公表予定, 54 (1985) 1989
- 4) Y. Takeda, S. Morimoto, A. Ito, T. Sato and Y. Miyako, J. Phys. Soc. Jpn 54 (1985) 2000
- 5) M. Suzuki and R. Kubo, J. Phys. Soc. Jpn, 29 (1968) 51
- 6) C. De Dominicis, H. Orland and F. Laineé, J. Phys. Lett. 46 (1985) L-463
- 7) K. L. Ngai, Comments. Solid State Phys. 9 (1979) 127
- 8) M. Ocio, M. Alba and J. Hammann, J. de Phys. Lett. to be published.
- 9) R. V. Chamberlin, G. Mozurkewich and R. Orbach, Phys. Rev. Lett. 52 (1984) 867