

「スピングラス(リエントラント転移を中心として)」

の配列を考えると、基底状態に対応するスピン・配列が得られる。Au 20 at %Mnでは強磁性的なマイクロ領域が発達しているのがみられる。しかし、15 at %Mnになると、このようなマイクロな強磁性領域は小さくなる。それより更に興味ある点は3つのMn原子が第1近接間にあり正三角形に並んだ配置をとっている部分が所々に見られるようになる。このような局所構造の1例を図2に示す。黒丸と白丸は互に反対のスピン状態を表わす。この場合、ここに示したようにMn原子の配置は変らなくとも、多様なスピンの配列が考えられる。したがって一義的に基底状態が決まらない原子配置になっている。これはリ・エントラント・スピングラスの性質と密接な関係にあると思われる。

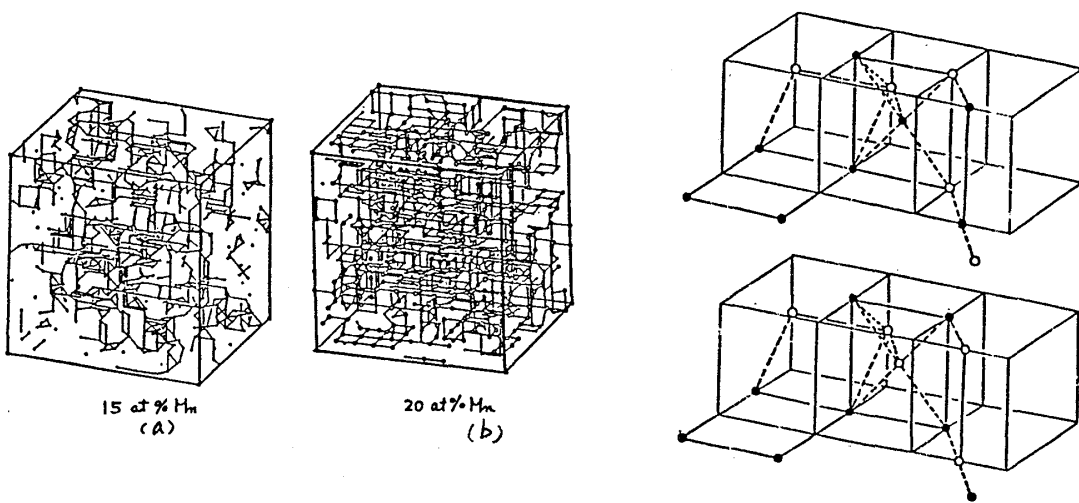


図 1

図 2

Atomic Short Range Orderを持つ不規則合金のスピングラス

名大・理 安達 健五

1. まえがき

不規則合金は多かれ少かれatomic short range order (ASRO)を持つ。これまでの spin glass理論は完全な不規則状態を前提として組み立てられているが、実験にはこの効果が含まれるので、それがどの様に現われるかを調べるのが本小稿の目的である。

ASROを表わすparameterとして、 $A_{1-x}B_x$ 合金 (Bは磁性原子)において

$$\alpha_i = 1 - [P_{BA}(\mathbf{R}_i)/(1-x)] \quad (1)$$

が用いられる。ここで P_{BA} は、原点に B 原子が居て \mathbf{R}_i の距離における i 番目隣接原子が A である確率である。 $\alpha_i = 0$ は完全不規則状態である。合金を大別すると最隣接原子について、 $\alpha_1 > 0$ は clustering type で $\alpha_1 < 0$ は ordering type と呼ばれる。回折現象では $\alpha(\mathbf{R}_i)$ をフーリエ変換した量が観測される(原田氏の項参照)。

clustering type としては Cu-Fe, Au-Fe 合金など ordering type としては Au-Mn, Ni-Mn 合金などがあげられる。ここではそれぞれの type の $\text{Cu}_{1-x}\text{Fe}_x$ と $\text{Au}_{1-x}\text{Mn}_x$ 合金について short range order の効果を調べる。

2. $\text{Au}_{1-x}\text{Mn}_x$ ¹⁾

$\text{Au}_{1-x}\text{Mn}_x$ の ASRO は $\alpha_1 < 0$, $\alpha_2 > 0$, ... で ASRO は fcc の cube edge (第 2 隣接) に鎖状の Mn 配列の net work を作る。この ASRO は x が 0.2 に近づく程、またアニーリングによって増大する。

Fig. 1 に見られるようにこの系のスピングラスは reentrant 型 (RE) である。 $x < 0.1$ のスピングラス-常磁性転移の帯磁率 χ は、磁場の減少によって peak が鋭くなり、そしてガラス転移点 T_g 以下では磁場冷却の影響が顕著に現れ、特有の磁気履歴曲線が得られる。 $x < 0.1$ の RE 相の磁気温度曲線 (例 $x = 0.14$) は磁場を増大することによって低温の RE 状態は容易に強磁性 (F) 相へ移行 (4.2 K で約 10 kOe) する。Fig. 2 に約 600 °C から急冷した試料につ

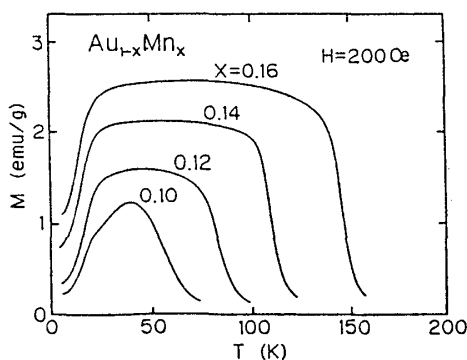


Fig. 1 $\text{Au}_{1-x}\text{Mn}_x$ のリエントラント状態の磁気温度曲線

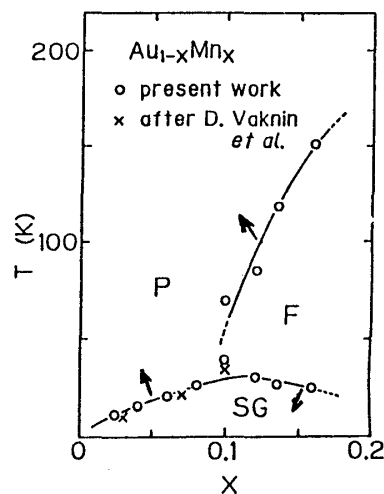


Fig. 2 $\text{Au}_{1-x}\text{Mn}_x$ の磁気状態図。矢印はアニーリング試料の変化の方向を示す。

いての磁気状態図を示す。用いた試料をアニールすることによってSG相の T_g およびF相の T_C は高くなり、一方RE相とF相の境界(AT線)が低下することが確認された。我々はF相内のGT線の存在はまだ確認していないが、恐らくGT線もアニールによって降下するものと予想される。

以上の結果は、磁気相互作用の観点から、第1隣接、第2隣接交換エネルギーが、それぞれ $J_1 < 0$ 、 $J_2 > 0$ として組成の変化およびアニーリングによる α_1 および α_2 の変化を導入することによって、定性的に説明される。

3. $\text{Cu}_{1-x}\text{Fe}_x$ 合金²⁾

$\text{Cu}-\text{Fe}$ 合金は、平衡状態ではFeがCuの中へ1%以内しか混らないので、合金液相からの超急冷法を用いて $x < 0.9$ までの固溶合金を作製した。状態図からも理解されるようにこの種の合金のASROはcluster型($\alpha_1 > 0$)である。 $\text{Cu}-\text{Fe}$ 固溶合金をアニールすると α_1 が増加してclusterを作り更にそれが集ってfccの $\gamma-\text{Fe}$ (Pauliの常磁性またはバンド反強磁性)の微粒子に移行し、最後はbccの $\alpha-\text{Fe}$ (強磁性)とCuが二相になることが知られている。これらのCuの中のFe原子の集り方と磁気モーメントの変化は、後述のMössbauer効果の実験により詳しく調べられる。

$\text{Cu}_{1-x}\text{Fe}_x$ 合金の帯磁率 $\chi(T)$ は典型的なスピングラスの挙動を示す。但し $\gamma-\text{Fe}$ が発生し始める組成 $x > 0.8$ やアニールした試料では χ のピークはぼけて来る。Fig. 3に1100°Cから急冷した試料とそれを400°C・2時間アニールした試料のグ

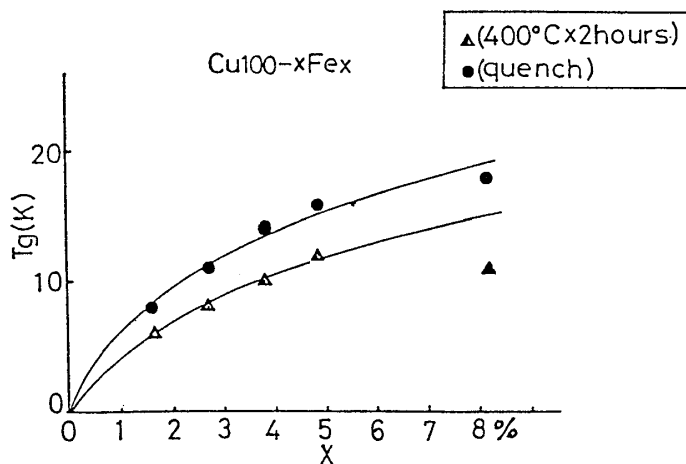


Fig. 3 $\text{Cu}_{1-x}\text{Fe}_x$ 合金の急冷およびアニールした試料のスピングラス転移温度

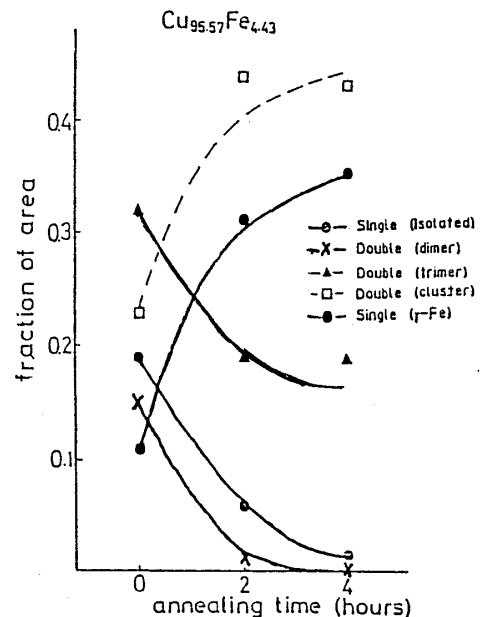


Fig. 4 $\text{Cu}_{1-x}\text{Fe}_x$ 合金の $x = 0.044$ の試料の孤立, dimer, trimer, cluster $\gamma-\text{Fe}$ の存在率のアニーリングによる変化

ラス転移温度 $T_g(x)$ を示す。双方とも $T_g(x)$ はほぼ $x^{1/2}$ に比例する。このように cluster 型 ASRO の発達に伴って T_g は低下する。 $x = 0.818$ の試料の T_g の低下は r -Fe の発生 (後述) によるものと考えられる。

常温のメスバウワースペクトルの分析によって Fe 原子の集り方が調べられる。スペクトルの四重極シフトの無いものは孤立 Fe 原子か r -Fe (fcc) である。組成 x やアイソマーシフトも考慮すると、孤立 Fe, dimer, trimer, cluster, r -Fe の占有率が求まる。Fig. 4 は $x = 0.044$ の急冷試料を 400°C でアニールしたときの上述の Fe の集合状態の割合を調べたものである。また低温メスバウワー効果から得られる内部磁場の分布曲線は、これらの五つの Fe の集合状態を反映していることも確かめられた。この様な Fe の集団化によって $\chi(T)$ の挙動は大巾に変わり、特に r -Fe の発生によって、 $\chi^{-1}(T)$ の傾斜は平坦化し、バンド磁性の特徴が現われる。

4. あとがき

以上の結果により、ASRO の存在および発達はスピングラスの特性に大きな影響を与えることが示された。問題点として、(1)このような ASRO の効果をどの様にスピングラス理論へ取り込んだらよいか? — 例えばガラス理論における交換エネルギーの分布関数への反映、(2)合金においてしばしば現われる合金化による局所環境効果としてのモーメントの長さの変化 — つまりバンド磁性とスピングラスの在り方、など今後に残された問題であろう。

本研究は著者と名古屋大学工学部・松井正顕・内山剛・握美正和によってなされた。

References

- 1) T. Nakashima et al.: J. Phys. Soc. Jpn. **43** (1977) 1870; H. Suzuki and J. Harada: Acta Cryst. **A38** (1982) 522; H. Suzuki and J. Harada: J. Mag. Mag. Mat. **31–34** (1983) 69; K. Ohshima et al.: J. Mag. Mag. Mat. **54–57** (1986) 157.
- 2) K. Adachi et al.: J. Mag. Mag. Mat. **54–57** (1986) 115.