

スピングラス系 $\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{TiO}_3$ および $\text{Mn}_x\text{Mg}_{1-x}\text{TiO}_3$ の交流帯磁率お茶の水女子大学 ^A理学部、^B人間文化研究科伊藤厚子^A、東方綾^B、藤井香澄^A

磁氣的に濃厚で典型的なイジング系である $\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{TiO}_3$ と、希釈系でハイゼンベルグ様系 $\text{Mn}_x\text{Mg}_{1-x}\text{TiO}_3$ について行った交流帯磁率の測定結果を報告する。

(1) 非線形帯磁率 ($\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{TiO}_3$, $\text{Mn}_x\text{Mg}_{1-x}\text{TiO}_3$)

これまでの理論および実験研究からリエントラント (RSG) 相は長距離秩序とスピングラスの混合相であることが分かっている。しかし、ここでリエントラント "相" と書いたが、リエントラント転移が熱力学的に厳密な意味での相転移であるかどうかは実験的に確認されておらず、その必要性がいわれてきた。そこでこの点を念頭において、

$\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{TiO}_3$ と $\text{Mn}_x\text{Mg}_{1-x}\text{TiO}_3$ のリエントラント転移をする濃度領域の試料について、非線形帯磁率の測定を試みた。 $\text{Fe}_{0.58}\text{Mn}_{0.42}\text{TiO}_3$ の測定結果を図 1 に、また、 $\text{Mn}_{0.60}\text{Mg}_{0.40}\text{TiO}_3$ の結果を図 3 に示した。それぞれ、(a) が線形帯磁率、(b) が非線形帯磁率である。また、比較のために、常磁性—スピングラス (SG) 転移をする試料 $\text{Fe}_{0.5}\text{Mn}_{0.5}\text{TiO}_3$ および $\text{Mn}_{0.54}\text{Mg}_{0.46}\text{TiO}_3$ の測定結果をそれぞれ図 2 および図 4 に示した。

まず、図 1 からみていく。 $\text{Fe}_{0.58}\text{Mn}_{0.42}\text{TiO}_3$ のネール点 T_N は 29 K、リエントラント転移点 T_{RSG} は 28 K である ($T_{\text{RSG}}/T_N \sim 0.97$)。図 1 (a) では T_N の位置がはっきりしないが、磁化および中性子散乱の温度変化から決めてある。図 1 (b) の非線形帯磁率は 28 K のあたりで発散的振舞いを示している。常磁性—スピングラス転移をする試料 $\text{Fe}_{0.5}\text{Mn}_{0.5}\text{TiO}_3$ (図 2 (b)) に比べて発散が弱く、幅も広い。しかし、試料中の僅かな濃度勾配が T_{RSG} に影響を及ぼす濃度領域にあることを考慮すると、図 2 (b) と大差はないと推定される。以上の結果はリエントラント転移が熱力学的相転移であることを強く示唆するものであると考えたい。しかし、Fe 濃度の高い $\text{Fe}_{0.62}\text{Mn}_{0.38}\text{TiO}_3$ ($T_{\text{RSG}}/T_N \sim 0.67$) では、 T_{RSG} で非線形帯磁率に発散的振舞いは観測されなかった。Fe 濃度とともに T_{RSG} でスピングラス転移をするスピンの数が減少することと関係していると思われるが、試料の質の吟味も含めて、今後、更に系統的に研究を進めたいと考えている。

次に $\text{Mn}_{0.60}\text{Mg}_{0.40}\text{TiO}_3$ の結果 (図 3) に注目する。磁化の温度変化で決めたこの試料の T_N と T_{RSG} はそれぞれ 8.6 K と 6.5 K である ($T_{\text{RSG}}/T_N \sim 0.76$)。中性子散乱測定では、9.1 K で Bragg 散乱が立ち上がり、温度の低下と共に散乱強度はしばらく増加するが、やがて減少に転ずる。すなわち、典型的なリエントラントスピングラスの振舞いを示している。

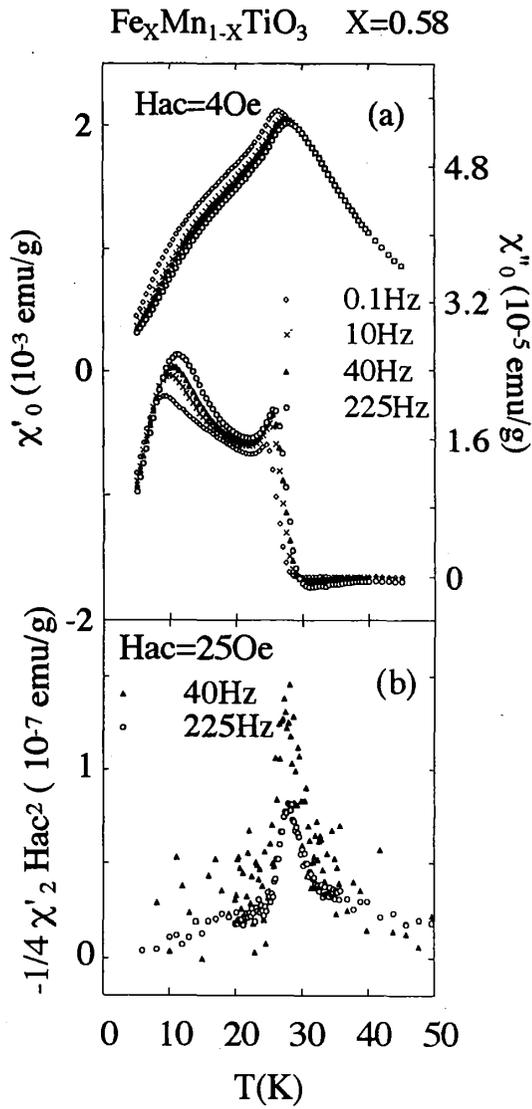


図1. リエントラントスピングラス $\text{Fe}_{0.58}\text{Mn}_{0.42}\text{TiO}_3$ の交流帯磁率の温度変化。
(a) χ'_0, χ''_0 (b) $(-1/4)\chi'_2\text{Hac}^2$

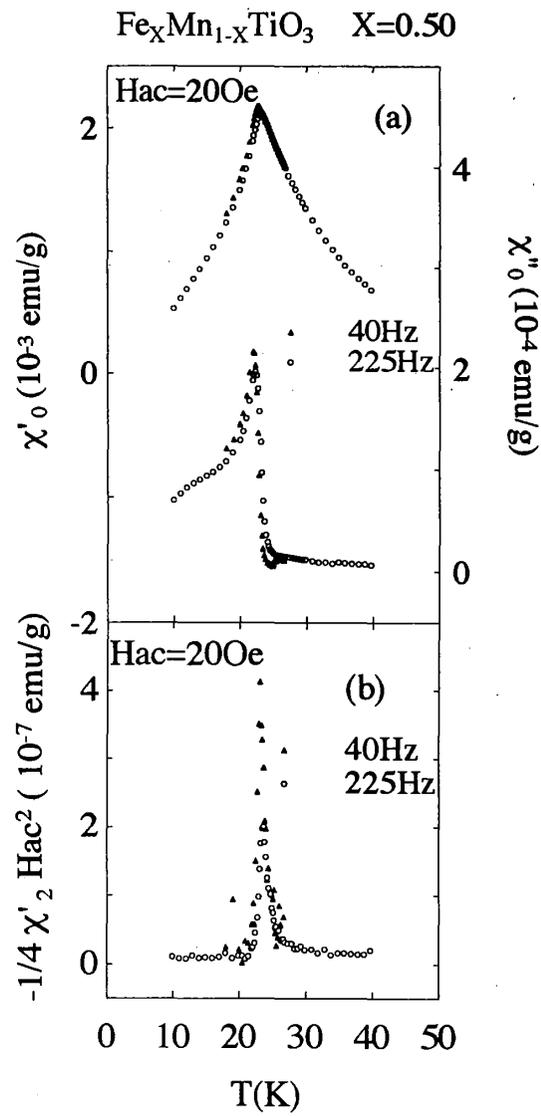


図2. スピングラス $\text{Fe}_{0.50}\text{Mn}_{0.50}\text{TiO}_3$ の交流帯磁率の温度変化。
(a) χ'_0, χ''_0 (b) $(-1/4)\chi'_2\text{Hac}^2$

図3(b)をみると、TRSG 近傍で非線形帯磁率に負の山が観測されている。しかし、幅がかなり広い。Mn_{0.60}Mg_{0.40}TiO₃ の場合には TRSG/TN~0.76 であり、SG 相と RSG 相を分ける境界の濃度からは離れている。そのことと関連して反強磁性秩序を形成しているスピン数が多いことが RSG 転移に影響を与えている可能性がある。

以上で述べたように、Fe_{0.58}Mn_{0.42}TiO₃ および Mn_{0.60}Mg_{0.40}TiO₃ において、TRSG で非線形帯磁率に負の発散的振舞いが観測されたが、TRSG での転移の性質を論ずるには、更に詳細かつ系統的な研究が必要であると考えられる。ちなみに、筆者らの知るところでは、これまでに3種類の強磁性ベースのリエントラントスピングラスで、非線形帯磁率の異常が報告されている。負の発散とみるにはあまりにもブロードであるが、御参考までに文献を記しておく。(H. P. Kunkel et al. J. Magn. Magn. Mater. 75(1988)98., H. Ma et al. J. Phys. : Condens. Matter 3(1991)5563., A.Chakrvarti et al. Solid State Commun. 82(1992)591.)

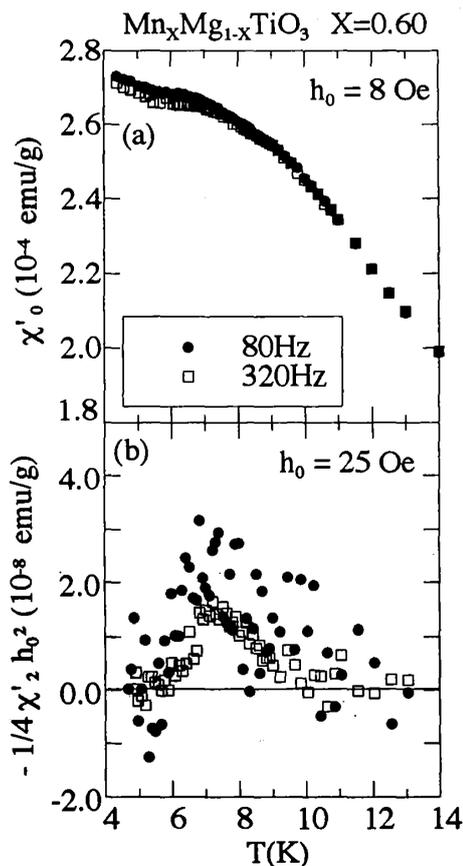


図3. リエントラントスピングラス Mn_{0.6}Mg_{0.4}TiO₃ の交流帯磁率の温度変化。
(a) χ'_0 , (b) $(-1/4)\chi'_2 h_0^2$

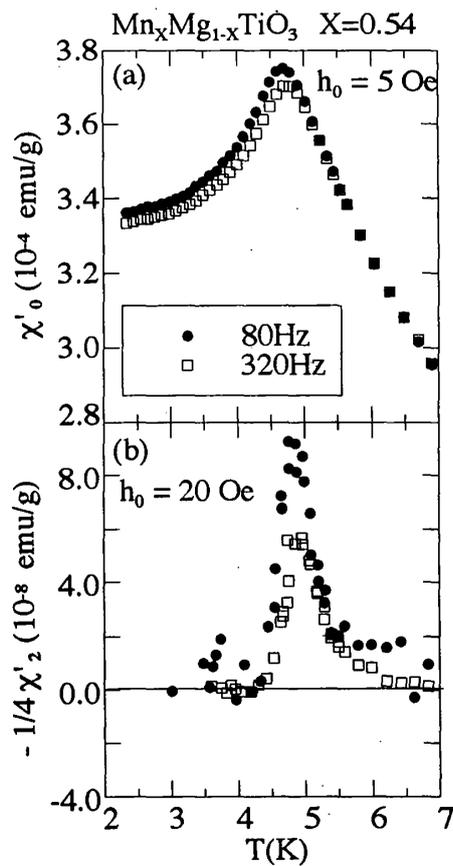


図4. スピングラス Mn_{0.54}Mg_{0.46}TiO₃ の交流帯磁率の温度変化。
(a) χ'_0 , (b) $(-1/4)\chi'_2 h_0^2$

(2) 線形帯磁率の周波数依存性 ($\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{TiO}_3$)

$\text{Fe}_{0.58}\text{Mn}_{0.42}\text{TiO}_3$ と $\text{Fe}_{0.62}\text{Mn}_{0.38}\text{TiO}_3$ について交流帯磁率の実部 $\chi'(f)$ と虚部 $\chi''(f)$ の温度変化をいろいろな周波数で測定した。ここでは、 $\text{Fe}_{0.58}\text{Mn}_{0.42}\text{TiO}_3$ についての $\Delta\chi'/\Delta f$ の周波数依存性を述べる。

いくつかの温度において $\Delta\chi'/\Delta f$ の周波数依存性を調べた。測定の周波数間隔はかなり粗いが、相い隣る周波数 f_i と f_j ($f_i < f_j$) での χ' について差を求めて $\Delta\chi'_{ij}/\Delta f_{ij}$ とおいた。図5に $\text{Fe}_{0.58}\text{Mn}_{0.42}\text{TiO}_3$ の結果を両対数プロットで示した。データはばらついているが、いずれの温度においても $\log(\Delta\chi'/\Delta f)$ と $\log f$ は直線関係にあるように見える。最小2乗法で決めた直線の傾きを図6に示した。直線の勾配が -1 であるということは、 $(\Delta\chi'/\Delta f)$ が $1/f$ に比例していることを示している。即ち、 $(\Delta\chi'/\Delta f) \propto (1/f)$ である。

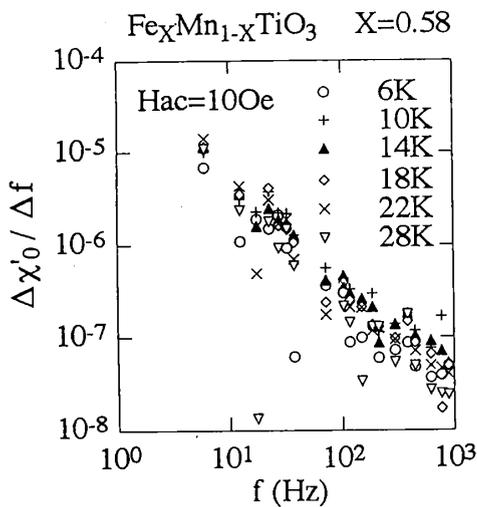


図5. リエントラントスピングラス $\text{Fe}_{0.58}\text{Mn}_{0.42}\text{TiO}_3$ の $\Delta\chi'_0/\Delta f$ の周波数変化

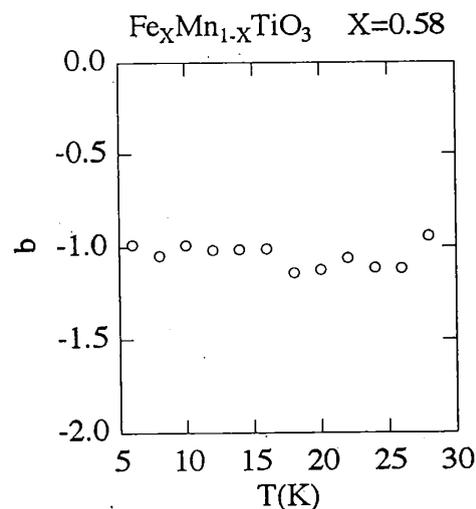


図6. 図5に示した $\Delta\chi'_0/\Delta f$ の周波数変化が $\Delta\chi'_0/\Delta f = a f^b$ に従うとして解析した時の b の温度変化

常磁性—スピングラス転移をする $\text{Fe}_{0.5}\text{Mn}_{0.5}\text{TiO}_3$ について、零磁場下での磁気ノイズの測定が行われており、スピングラス状態でのパワースペクトル $S(f)$ が $1/f$ に比例するという結果が得られている。上で述べた $\text{Fe}_{0.58}\text{Mn}_{0.42}\text{TiO}_3$ は $T_N \sim 29\text{ K}$ 、 $T_{\text{RSG}} \sim 28\text{ K}$ のリエントラントスピングラスであるが、 T_N と T_{RSG} が接近していることから $T < T_{\text{RSG}}$ ではスピングラスの性質が強く反映されていると考えれば、 $\Delta\chi'/\Delta f$ と $S(f)$ の f 依存性が対応していることになる。