

本研究は、文部省科学研究費補助費及び信越科学・信越半導体奨学寄付金を用いて行われた。

文 献

- 1) K. Fujimoto, T. Yoshihara and Y. Natsume; T. Yoshihara, K. Fujimoto and Y. Natsume, Theoretical and Applied Mechanics **36** (University of Tokyo Press, Tokyo, 1987).
- 2) Y. Natsume, K. Fujimoto and T. Yoshihara, International Symposium on Physics of Magnetic Material, No. 71, Sendai, April 1987.
- 3) Y. Natsume, T. Yoshihara and K. Fujimoto, Intermag '87 Conference, AG-15, Tokyo, April 1987.
- 4) H. Kawamura and M. Tanemura, J. Phys. Soc. Jpn. **55** (1986) 1802.
- 5) 物性研究, 本研究会報告の勝又鉦一, 伊藤厚子 他, 有賀浩子 他を参照。
- 6) T. Suzuki and Y. Natsume, J. Phys. Soc. Jpn. **56** (1987) No.4.

9. 短距離・イジング型 (Fe, Mn)TiO₃系の相図と スピングラス領域におけるスピン系の緩和

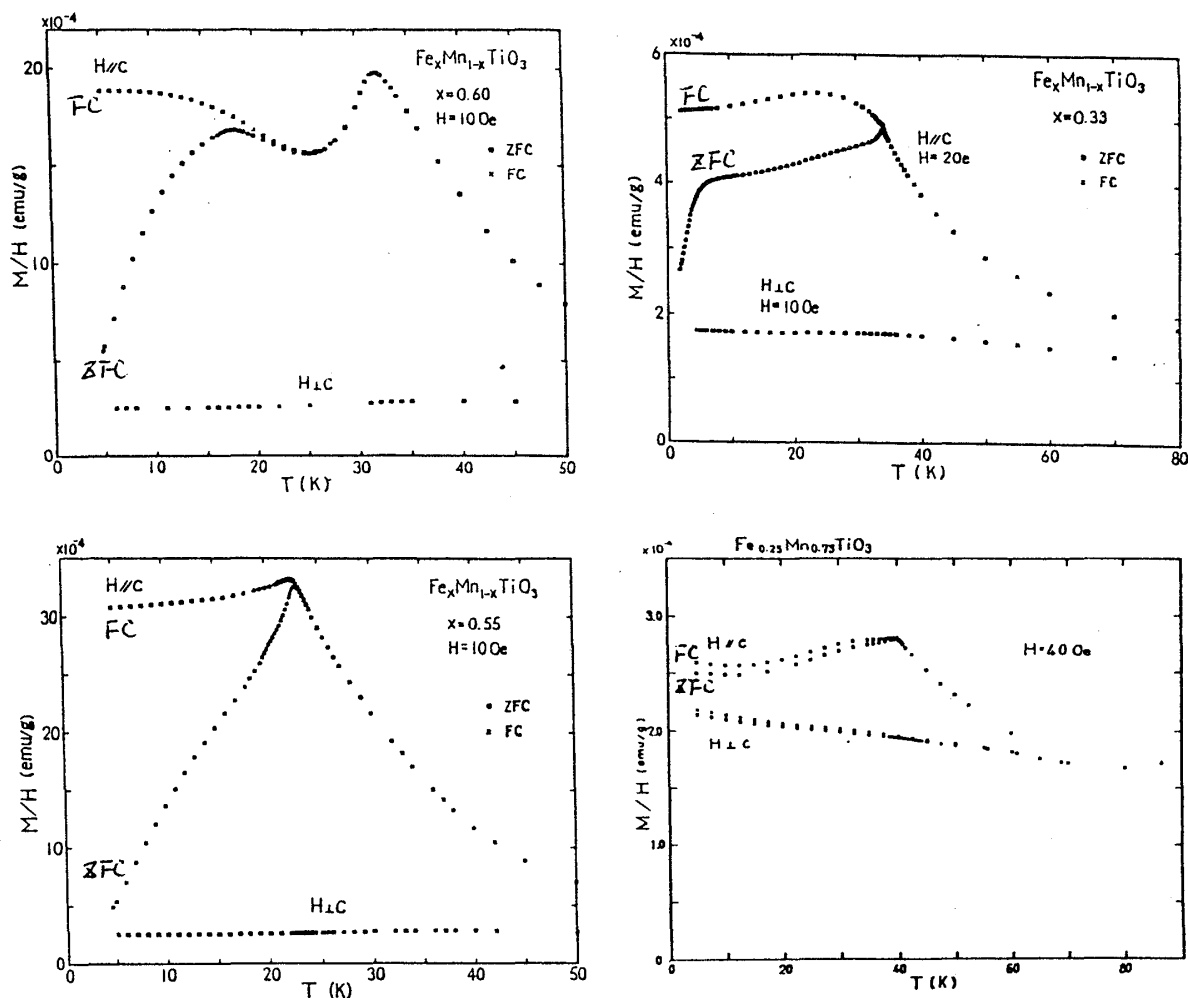
お茶の水大・理 伊藤厚子, 有賀浩子, 鳥養映子
東北大・金研 菊地昌枝, 庄野安彦, 武居文彦

混晶 $\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{TiO}_3$ の $x=0.50$ の試料は、低温で典型的なイジング型スピングラス (SG) になることを、いろいろな機会に報告してきた。 $x=0.5$ において、スピングラスとしての特徴が、これまでに知られている多くの系に比べて強く現われている点が、混晶 $\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{TiO}_3$ に対する我々の期待を膨らませた。この系は、反強磁性体 (AF) どちらの混晶であるが、磁気構造をみると、スピンは FeTiO_3 では六方晶の c 面内で強磁性的に、 MnTiO_3 では反強磁性的に結合しており、最隣接相互作用の競合が、中間濃度領域でスピングラスの出現する原因になっている。 $x=0$ と 1 が常磁性 (P) $\rightarrow$ AF 転移, $x=0.5$ が P $\rightarrow$ SG 転移をすることがわかっている。このため、 $x=0.5$ の両側に、いわゆるリエントラント転移 P $\rightarrow$ AF $\rightarrow$ SG を示す濃度領域の存在が期待される。そこで、いろいろな x の試料を作って、SQUID 磁束計 (池田宏信氏の

御好意による）で磁化の測定を行った。

1. （濃度－温度）相図

$x = 0.75, 0.65, 0.60, 0.55, 0.50, 0.41, 0.33, 0.25, 0.15$ の各試料について、零磁場冷却（ZFC）と磁場中冷却（FC）の条件で、磁化 M^{ZFC} と M^{FC} の温度変化を測定した。 $\chi^{\text{ZFC}} \equiv M^{\text{ZFC}}/H$ と $\chi^{\text{FC}} \equiv M^{\text{FC}}/H$ の間にヒステレシスのみられる温度変化の様子を第1図に示す。



第1図

(1) $x = 0.75, x = 0.15$: 図には示していないが、全温度領域で χ^{ZFC} と χ^{FC} は一致していて、 $P \rightarrow \text{AF}$ 転移を特徴づけるピークが観測されている。

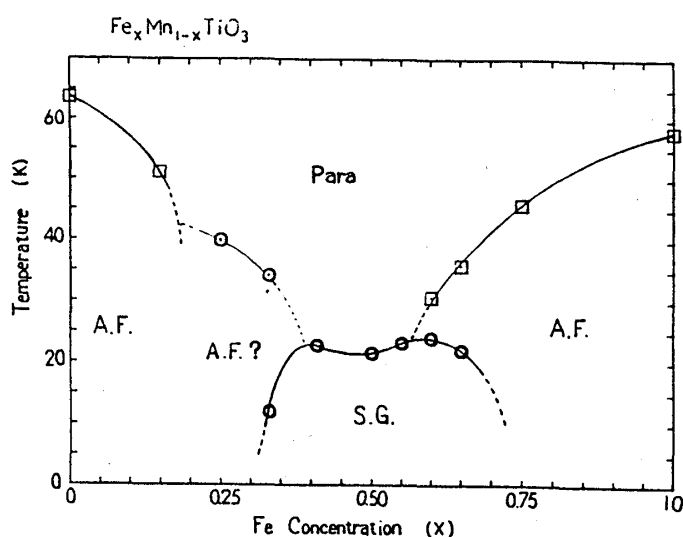
(2) $x = 0.65, 0.60$: $x = 0.60$ の振舞いをみると、 $P \rightarrow \text{AF}$ 転移を示す $T_N = 32$ K のピークの他に、 ~ 18 K に幅の広いピークがみられる。しかし、 χ^{ZFC} と χ^{FC} の差は 24 K から現われて、それ以下の温度で磁化に長時間緩和が観測されるようになる。従って、24 K 以下でスピングラスにリエントラント転移すると考えられる ($T_g = 24$ K)。詳細は省略するが、18 K あたりの

χ^{ZFC} の幅広い山は、系が $T_g = 24\text{K}$ でスピングラスに転移して磁場に対する応答が大きくなることと、低温になるにつれて χ^{ZFC} が小さくなることの兼ね合いで生じたものと解釈される。試料 $x=0.65$ の χ も $x=0.60$ と同様の温度変化をする。 $T_N=22\text{K}$, $T_g=37\text{K}$ である。 $T < T_g$ で χ^{ZFC} がピークを示す例はこれまでに報告されていない。 $\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{TiO}_3$ は磁氣的に濃厚な系であるが故に、フラストレーションの度合いが大きくて、リエントラント転移に伴う状態変化が帯磁率に強く反映されたのであろう。今後の研究に有望な系であると考えている（次の有賀らの報告参照）。

(3) $x=0.55, 0.50, 0.41$: 図には $x=0.55$ の例を示したが、他の試料の温度変化も同様である。 $x=0.60$ と $x=0.55$ で Fe 濃度の差は僅か 5% であるが、帯磁率は劇的に変化している。 $x=0.55$ では、 $\text{P} \rightarrow \text{SG}$ 転移を示す鋭いカusp 状のピークが観測されて、低温側で χ^{ZFC} と χ^{FC} に差が生じ、スピングラスに特徴的な磁化の長時間緩和がみられる。

(4) $x=0.33$: χ^{ZFC} がカusp 状ピークを示す温度以下で帯磁率にヒステレシスが存在する。しかし、低温側の温度変化の様子は $x=0.41$ のもの ($x=0.55$ と定性的に同じ) とは全く異なっている。温度を下げていくと χ^{ZFC} の温度変化が緩慢な領域がしばらく続いて、7K あたりから急激に減少を始める。 χ^{ZFC} の変曲点は $\sim 12\text{K}$ である。 $\sim 12\text{K}$ を境にして磁化の長時間緩和の様相は大きく変化する。 $T > \sim 12\text{K}$ では、長時間緩和があるとしても、その時間尺度は非常に長く、100 分程度の測定では有意な情報が得られなかった。一方、 $T < \sim 12\text{K}$ では、 $x=0.50$ と同程度の時間尺度の緩和が観測される。そこで、我々は低温の状態がスピングラスと判定して、 χ^{ZFC} の変曲点を T_g と定義した ($T_g = 12\text{K}$)。では、 χ^{ZFC} がカusp を示す温度ではどのような転移が生じているのか。 χ^{FC} の振舞いに着目すると、 χ^{FC} は測定磁場 H に敏感で、 H が小さい程、その値が大きくなる傾向を示す。その様子は希釈反強磁性体によく似ている。断定はできないが、とりあえず、カusp の温度以下で、ランダム反強磁性体が形成されると考えておく。もしそうであれば、 $x=0.65, 0.60$ とは異なるリエントラント転移を示す例となろう。

(5) $x=0.25$: $x=0.33$ の温度変化と似ているが、下の転移点が存在しない。



第2図

以上の結果をもとにつくった相図を第2図に示す。Mn 高濃度側の転移点の濃度変化も、 $x = 0.25$ と 0.15 の間にもう一つ相境界が存在することを示唆している。

II. スピングラス状態における磁化の長時間緩和

試料 $x = 0.50$ を T_g 以下のある温度に保っておくと、 M^{ZFC} 及び熱残留磁化 M_{TRM} は時間のべき乗で変化し、べきは温度の指数関数であることを報告した。¹⁾ この結果は、Ogielski のシミュレーションの結果²⁾ とよく一致している。彼は、短距離・イジングモデルを用いて、熱力学的平衡状態における秩序パラメタ $q(t) = \overline{S_x(0) S_x(t)}$ の減衰を求めているので、我々の結果がそれとよく一致するということは、長時間緩和を示すスピン系の状態は、熱力学的平衡状態からそれ程かけ離れてはいないことを示唆している。詳細は文献 1) を参照していただきたい。

文 献

- 1) A. Ito, H. Aruga, E. Torikai, M. Kikuchi, Y. Syono and H. Takei, Phys. Rev. Lett. **57** (1986) 483.
- 2) A. T. Ogielski, Phys. Rev. **B32** (1985) 7384.