

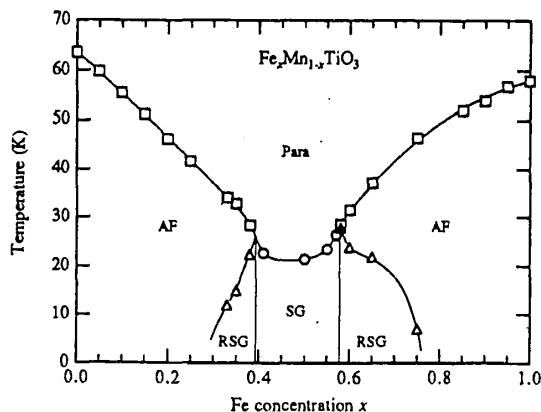
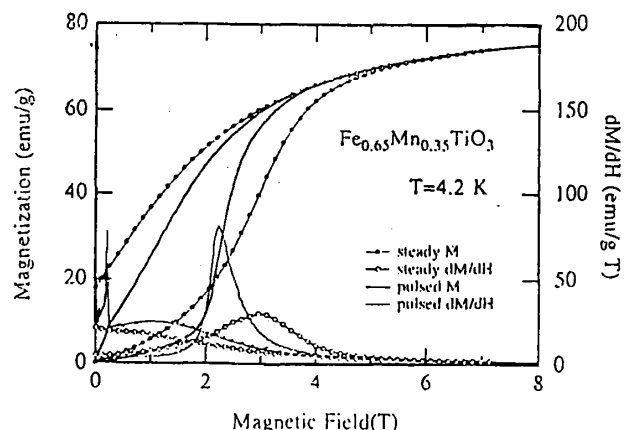
リエントラントスピングラス $\text{Fe}_{0.65}\text{Mn}_{0.35}\text{TiO}_3$ のメタ磁性転移

東京大学物性研究所 香取 浩子

1. はじめに

FeTiO_3 と MnTiO_3 との混晶である $\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{TiO}_3$ は系内で交換相互作用に競合が生じている絶縁体であり、弱磁場磁化測定の結果から、図1のような濃度(x)–温度(T)相図が得られている[1]。 $0.58 \leq x \leq 0.75$ の試料はリエントラントスピングラス(RSG)の振舞いを示すが、これらの試料のRSG相は、 FeTiO_3 型の反強磁性長距離秩序とスピングラス(SG)とが共存しているmixed相である[1, 2]。 FeTiO_3 が磁場の印加によりメタ磁性転移を起こすことを反映して、これらのRSGもメタ磁性転移を起こす。しかし、このメタ磁性転移は、非常に特異な温度依存性、磁場掃引速度依存性を示すことが最近の研究によって明かとなった[3, 4]。

磁化過程が磁場掃引速度に大きく依存する例として、 $x=0.65$ の試料（反強磁性転移温度 $T_N=37.1\text{K}$ 、RSG転移温度 $T_{\text{RSG}}=22.0\text{K}$ ）の定常磁場下及びパルス磁場下で得られた4.2Kでの磁化過程を図2に示す。ここで着目すべき点は、定常磁場下で測定した場合とパルス磁場下で測定した場合とでは、メタ磁性転移のヒステリシスの形が大きく異なり、また、パルス磁場下でのメタ磁性転移の方が、定常磁場下での転移よりも低磁場で、しかもシャープに起こっている点である。ここで観測された振舞いは、磁場掃引速度が速いほど系の磁場に対する応答が遅れる、即ち、磁場上昇時の転移磁場が高磁場側にシフトするという普通の系の場合の振舞いとは逆の振舞いである。このように両者の間で大きく異なった磁化過程が観測された原因は、後で詳しく述べるように、この物質がRSGであることに起因していると考えられる。しかし、パルス磁場を用いて反強磁性体の磁化過程を測定した場合、断熱消磁によって試料の温度が低下するという問題が生じる。即ち、パルス磁場下でのメタ磁性転移は、断熱消磁による試料の温度低下のためにシャープに観測されたのではないかという見方である。この特異な磁化過程に対する断熱消磁の寄与は、定常磁場下およびパルス磁場下での磁化過程の温度依存性を調べることでより明らかにすることができる。

図1 $\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{TiO}_3$ の x – T 相図図2 $\text{Fe}_{0.65}\text{Mn}_{0.35}\text{TiO}_3$ の磁化過程

このような目的から、 $x=0.65$ の試料における定常磁場下およびパルス磁場下での磁化過程の温度依存性について調べた。その結果、定常磁場下で特異な温度依存性を示すことが明らかとなったので、その詳細について報告する。

2. 定常磁場下での磁化過程の温度依存性

定常磁場下で得られた磁化過程を図3に示す。なお、測定の際の磁場掃引速度は $1.7 \times 10^{-3} \text{ T/s}$ とし、温度は測定温度の1%以下の範囲内で制御を行った。 $1.7 \text{ K} \leq T \leq 10.0 \text{ K}$ の温度領域での磁化過程にまず着目すると、温度の低下と共にヒステリシスが急激に大きくなっていることがわかる。ここで、磁場上昇時の微分磁化率 dM/dH が最大となる磁場を転移磁場 H_M と定義すると、図3より、温度の低下と共に H_M は高磁場側にシフトしていることがわかる。これは、温度が低下するほどメタ磁性転移が起こりにくくなっていくことを意味しており、図2に現われている定常磁場下とパルス磁場下での磁化過程の違いは、断熱消磁の影響では説明できない振舞いであることが明らかとなった。

さらに 1.6 K 以下の温度では、磁場を上昇させていく過程において、磁化が急に増大するという一次転移的なメタ磁性転移が観測された。 $1.46 \text{ K} \leq T \leq 1.6 \text{ K}$ の温度領域では、図4に示したように、測定温度や磁場掃引速度の条件を同一にしても、一次転移的なメタ磁性転移は異なった磁場中で起こり、また、飛びが2度起こる場合も観測された。また、ゼロ磁場での残留磁化も、 40 emu/g 程度の大きな残留磁化が存在する場合と、磁場をゼロにした途端に残留磁化が 2 emu/g 程度まで減少してしまう場合とが観測された。また、磁場をゼロにしてからの残留磁化の時間変化の測定を行なったところ、 $1.46 \text{ K} \leq T \leq 1.6 \text{ K}$ の温度では、 40 emu/g 程度の磁化が時間と共に徐々に減少する場合と、100秒ほど経過したところで急激に減少してしまう場合とが観測された。しかし、 1.7 K 以上では、残留磁化が時間と共に徐々に減少する振舞いのみ観測された。

ここで、一次転移的な飛びが起こる場合、磁化が飛びによって達する値について考察を試みる。磁化の温度変化を測定した場合、SG相や

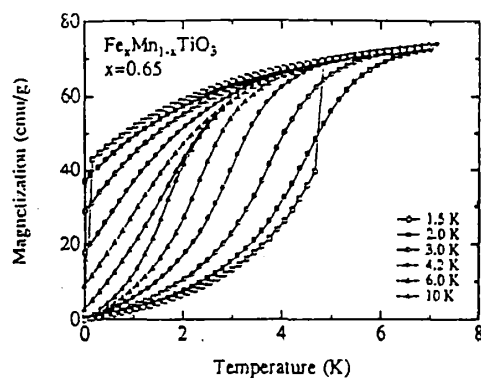


図3 $\text{Fe}_{0.65}\text{Mn}_{0.35}\text{TiO}_3$ の定常磁場下における磁化過程の温度依存性

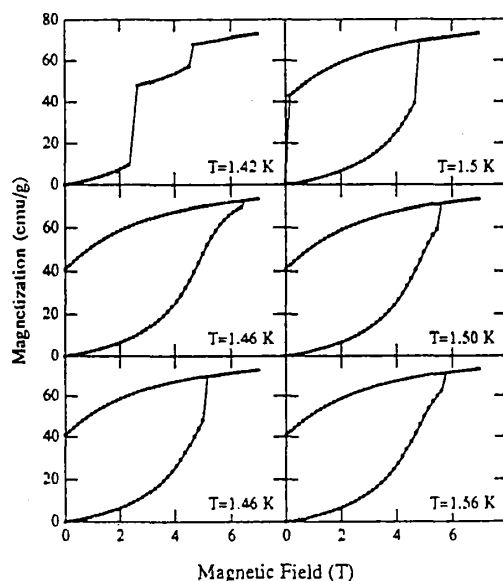


図4 $\text{Fe}_{0.65}\text{Mn}_{0.35}\text{TiO}_3$ の $1.46 \text{ K} \leq T \leq 1.6 \text{ K}$ で得られた定常磁場下における磁化過程

RSG相では、ゼロ磁場冷却(ZFC)後の磁化 M^{ZFC} と、磁場中冷却(FC)の磁化 M^{FC} とでは値が大きく異なる。しかし、これまでに行なわれた磁化の緩和現象の研究から、 M^{FC} の状態の方がその磁場中での系の安定状態に近い状態であることが明かとなっている[5]。そこで、磁化が一次転移的な飛びによって達する値とその磁場中での安定状態である M^{FC} の値との比較を行なった。

この試料における M^{ZFC} と M^{FC} の温度変化を様々な磁場中で測定し、各温度における M^{FC} の値をそれぞれの磁場について読み取ることにより、各温度ににおける M^{FC} の磁化曲線、即ち、安定状態での磁化過程を得ることができる。例として、5Kにおける M^{FC} の磁化曲線を図5に示す。この磁化曲線の温度依存性は20K以下ではほとんど認められなかった。

$T \geq 1.7$ Kで得られた磁化過程を安定状態での磁化過程と比較してみると、図5(a)に示したように、温度の低下と共に、安定な状態が描く磁化過程から徐々に離れていくことがわかる。これは、準安定状態からその磁場での安定状態への移行が、10K以下で急激にしにくくなっていることを示している。さらに、一次転移的なメタ磁性転移が観測された $T \sim 1.5$ Kでの磁化過程を安定状態での磁化過程と比較すると、図5(b)に示したように、磁化が飛びによって達する値は M^{FC} の値にかなり近い値であることがわかった。従って、一次転移的なメタ磁性転移によって、系が準安定状態からその磁場での安定状態に不連続的に移行していると考えらる。

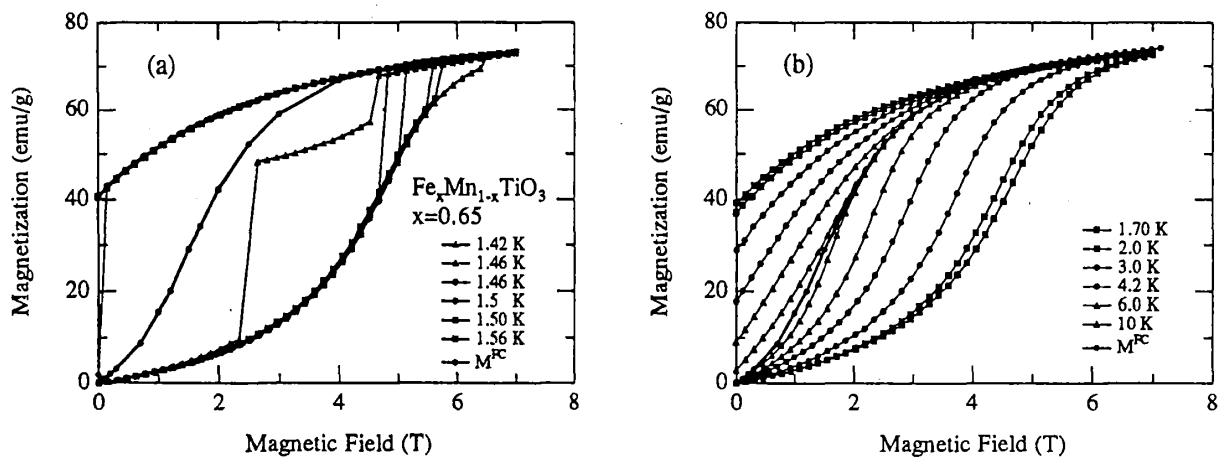


図5 $\text{Fe}_{0.65}\text{Mn}_{0.35}\text{TiO}_3$ の5Kにおける M^{FC} の磁化曲線と定常磁場下で得られた磁化曲線

3. パルス磁場下での磁化過程の温度依存性

1.6Kおよび4.2Kで得られたパルス磁場下での磁化過程を図6に示す。ただし、パルス磁場の磁場掃引速度は $\sim 10^3$ T/sである。温度の違いによる磁化曲線の変化は僅かであり、定常磁場下での磁化過程のような特異な変化は起こっていない。さらに温度を上昇させても、ヒステリシスの幅が徐々に小さくなりながら H_M が低磁場側

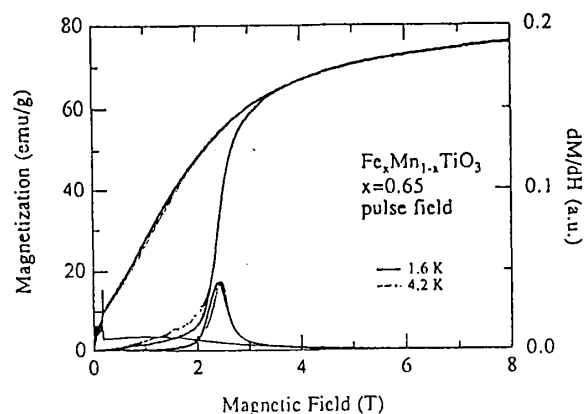


図6 $\text{Fe}_{0.65}\text{Mn}_{0.35}\text{TiO}_3$ のパルス磁場下における磁化過程の温度依存性

にシフトするのみで、磁化曲線に大きな変化は観測されなかった[6]。このことから、磁場掃引速度 $\sim 10^3$ T/sでは通常のリッチ磁気転移の温度依存性と同様の振舞いを示すことが明らかとなった。

4. おわりに

以上のような磁化過程の温度変化から、この系について、次のように考えることができる。この系はRSGであるため、 T_{RSG} 以下では準安定状態が多数存在する。普通の系では、磁場を印加した場合、系はその磁場での安定状態へただちに移行する。しかし、この試料では、温度の低下と共に磁化過程に大きなヒステリシスが現われることから、系が準安定状態から安定状態へ急に移行しにくくなっていると考えられる。定常磁場下で得られた磁化過程について考えてみると、10 K以下でその磁場での安定状態への移行がより遅れていることから、温度の低下により、スピンの熱的な揺らぎが小さくなり、スピンの完全な凍結状態に近づいていくために、スピンの安定状態へ向けての再配列がしにくくなっていると推測できる。しかし、1.5 K付近で一次転移的な飛びが様々な磁場中で起こることから、この系におけるリッチ磁気転移の機構には、温度や磁場掃引速度の他に、系が多数存在する準安定状態の中のどの状態をとっているかということも関係していると考えられる。さらに、ヒステリシスの大きさについて定常磁場の場合とパルス磁場の場合とで比較すると、磁場掃引速度が速いパルス磁場の方が小さいことから、普通の系とは異なり、磁場掃引速度が速いことが系の安定状態への移行を助けていると考えられる。

このように、 $x=0.65$ の試料では、普通の秩序系では考えられないような磁化過程の温度依存性、磁場掃引速度依存性が観測された。これは、この試料がRSGであり、さらにRSG相が反強磁性長距離秩序とSGとの共存相であることが大きく関係していると考えられる。今後、さらに様々な磁場掃引速度を用いて磁化過程の温度依存性を研究していく予定である。

References

- [1] H. Aruga Katori and A. Ito, J. Phys. Soc. Jpn. 62 (1993) 4488.
- [2] H. Yoshizawa, S. Mitsuda, H. Aruga and A. Ito, Phys. Rev. Lett. 59 (1987) 2364;
H. Yoshizawa, S. Mitsuda, H. Aruga and A. Ito, J. Phys. Soc. Jpn. 58 (1989) 1416.
- [3] A. Ito, C. Oyama, H. Kato and Y. Nakagawa, Sci. Rep. RITU A38 (1993) 237.
- [4] A. Ito, C. Oyama, H. Aruga Katori, T. Goto, H. Kato and Y. Nakagawa, Physica B (1994) in press.
- [5] A. Ito, H. Aruga, E. Torikai, M. Kikuchi, Y. Syono and A. Takei, Phys. Rev. Lett. 57 (1986) 483.
- [6] H. Aruga Katori, T. Goto, S. Ebii and A. Ito, J. Magn. Magn. Mater. 104-107 (1992) 1635.