

たほうがよりよい結果を得られる。

TDRによりNaDNAの水和水の誘電緩和を測定した。最も低周波に現れる生命結合水のモードは通常の、緩和時間の分布を表すHavriliak-Negamiの式では説明できなかった。このモードはある種の振動のようでもあるが、普通の減衰振動ではない。これはSUMモデルによって得られるスペクトルとよく一致している。

6. イジングスピングラス $\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{TiO}_3$ の 強磁場磁化過程による研究

海老井 祥 代

高磁場下でのスピングラス系の振舞いを研究するために、典型的なイジング型混晶 $\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{TiO}_3$ について、高磁場磁化過程を測定した。

強磁場磁化過程の測定は、 $\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{TiO}_3$ の全濃度領域にわたって、いろいろな濃度比の単結晶試料について、主として、最大測定磁場 $\sim 40\text{T}$ 、測定温度 4.2K で行なった。さらに、 $x=0.95$ 、 0.75 、 0.50 の試料については、最大測定磁場 $\sim 100\text{T}$ 、測定温度 $\sim 10\text{K}$ での磁化過程の測定も行なった。その結果、 $1.0 > x \geq 0.33$ の試料においては、 10T 以下の中磁場領域で、 FeTiO_3 の磁化過程に似たスピンプリップ様のとびが観測された。 $1.0 > x \geq 0.33$ のいずれの試料においても、スピンプリップ様のとびによって達する磁化の大きさは、各試料の濃度比から見積った、フルモーメントに対応する磁化の大きさに比べると小さくなっている。また、とびの後の磁化の磁場に対する傾きは、いずれの試料においても FeTiO_3 における傾きに比べると大きく、その傾きは、Mn濃度の高い試料ほど大きい。さらに、 $\sim 100\text{T}$ までの磁化過程の測定では、測定を行なった3つの試料全てで、スピンプリップ様のとびの他に第二のとびが観測された。一方、 $0.0 < x \leq 0.25$ においては、 MnTiO_3 の磁化過程に似たスピンプロップ様のとびが観測された。しかし、そのとびが起こる前の磁化曲線の形は、 MnTiO_3 における磁化過程の形とは大きく異なり、常磁性体における磁化過程の形に類似している。この事実は、 $0.0 < x \leq 0.25$ の試料における磁化は2種類の寄与から成り立っていることを示唆している。

強磁場磁化過程の他に、 $x=0.95$ ($T_N=57\text{K}$)の単結晶試料及び粉末試料について、メスバウア測定を行なった。測定は零磁場のもとで行い、測定温度は 4.2K である。その結果、 Fe^{2+} モーメントの中にスピン容易軸である c 軸から傾いて

いるものがあることが明かとなった。この事実は、スピンの c 軸と平行な成分 (スピンの縦成分と呼ぶ) の他に、 c 軸と垂直な成分 (横成分) が存在していることを示している。

以上の測定結果を考察することにより得られた結論は次に述べる通りである。

$\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{TiO}_3$ における Fe-Mn 間の最隣接の交換相互作用について、その符号が負であるということが明かとなった。この $\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{TiO}_3$ における Fe-Mn 間の最隣接の交換相互作用については、これまでの弱磁場下での研究からは、その大きさも符号も全くわかっていなかったものである。

$\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{TiO}_3$ における Fe-Mn 間の最隣接の交換相互作用の符号が負であるということから、Mn が Fe の中に孤立して存在すると考えられるような Fe の濃度の非常に高い試料においては、 Mn^{2+} モーメントは Fe^{2+} モーメントが形成している FeTiO_3 型の反強磁性長距離秩序 (c 面内は強磁性的、 c 面間は反強磁性的にスピンが結合) に参加していないと考えられる。このことから、Fe の濃度の非常に高い試料は、低温でもスピングラス相が出現しない反強磁性体であるにもかかわらず、その反強磁性相は、 FeTiO_3 における反強磁性相とは異なる、乱れを含んだ反強磁性相であることが明かとなった。一方、Mn 高濃度側の反強磁性体となる試料においても、強磁場磁化過程の測定から、系の中で、 MnTiO_3 型の反強磁性秩序 (c 面内、 c 面間とも反強磁性的にスピンが結合) を形成している状態と、常磁性的に振舞っている状態が共存していることが明かとなった。つまり、Mn 高濃度側の反強磁性相も、 MnTiO_3 における反強磁性相とは異なる乱れた状態にあることになる。これらの事実は、低温でスピングラス相の出現しない試料の反強磁性相においても、系の中は既に乱れた状態にあり、スピングラスあるいはリエントラントスピングラスとなる濃度領域において、系に乱れが突然現われるわけではないということを示している。

反強磁性体においては、スピNFLリップ転移やスピNFLロップ転移の起こる転移磁場の大きさから、交換磁場の大きさ (H_E) を求めることができる。

$\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{TiO}_3$ についても、反強磁性体となる濃度領域の試料における H_E について検討した。Fe 高濃度側の反強磁性体となる試料について、スピNFLリップ様のとびが起こる磁場の大きさから H_E を見積った。ここで決めた H_E は面間の交換相互作用の大きさに対応している。Fe 高濃度側の試料においては、 H_E は Mn 濃度とともに急激に減少していくことが明かとなった。また、その変化率は、やはり Mn 濃度とともに低下していくネール点 (T_N) の変化率に比べ大きい。 T_N には、

面内、面間を含めた 3 次元的な交換相互作用の大きさが関係している。即ち、Fe 高濃度側の試料においては、Mn 濃度が高くなるにつれて、面間の交換相互作用の大きさが急激に小さくなっていくと考えられ、混晶にすることによる系の乱れが、面間の交換相互作用をより弱めるように働いていると考えられる。一方、Mn 高濃度側の試料についても、スピントロップ様のとびが起こる磁場の大きさから、 H_E を見積った。Mn 高濃度側の試料においては、 H_E は Fe の濃度とともに減少していく。Mn 高濃度側の試料についても H_E と T_N の変化率を比較したところ、2 つの変化率はほぼ一致していることがわかり、 $MnTiO_3$ における T_N の値が H_E の大きさに比べ非常に低くなっているということが明かとなった。 $MnTiO_3$ において H_E の大きさに比べて T_N が低いのは、 $MnTiO_3$ がもつ 2 次元性が強いという性質によるものであると考えられる。以上のことから、Mn 高濃度側の試料においては、混晶にすることによって面間の交換相互作用の相殺の条件が崩れて、2 次元性が破られていると考えられる。

$Fe_xMn_{1-x}TiO_3$ のスピングラス領域の試料については、既に行なわれているメスバウア測定によりスピンの横成分の存在が観測されていた。 $Fe_xMn_{1-x}TiO_3$ において、スピンの横成分が存在するという事実は、強磁場磁化過程の測定からもスピントロップ様のとびの後の磁化の磁場に対する傾きが大きいという現象によって確かめられた。さらに、今回 $x=0.95$ の試料について、メスバウア測定を行なった結果、常磁性－反強磁性転移を示すのみで、低温までスピングラス相の出現しない Fe の濃度の非常に高い試料においても、スピンの横成分が存在していることが明かとなった。この事実も、イジングスピングラス系における反強磁性相は、普通の反強磁性体の反強磁性相とは異なる状態にあることを示す新しい発見である。

さらに、強磁場磁化過程で得られた結果は、弱磁場下での研究から得られている濃度－温度相図と密接な関係にあることも明かになった。スピングラス系における高磁場下での研究はこれまでほとんど行なわれていなかったが、本研究によってスピングラス系の高磁場下での振舞いがスピングラス系の性質を理解する上で重要な情報源であることが明らかになった。