

Title	メスバウワー効果とスピングラス
Author(s)	国富, 信彦
Citation	大阪大学低温センターだより. 1988, 64, p. 1-4
Version Type	VoR
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/7430">https://hdl.handle.net/11094/7430</a>
rights	
Note	

*Osaka University Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

# メスバウワー効果とスピングラス

理学部 國 富 信 彦

## はじめに

磁気モーメントの空間分布を観測するための最も直接的な手段は中性子回折法であることは周知の事実である。実際、中性子の散乱断面積  $d\sigma/d\Omega$  は実空間内の位置  $i$  にある磁気モーメント  $S_i$  の相関関数の逆格子空間へのフーリエ変換として

$$d\sigma/d\Omega = k \int \langle S_i S_j \rangle \exp(iQ \cdot r_{ij}) d r_{ij}$$

と書けるから、観測された断面積を逆フーリエ変換することによって、どんな磁気モーメント分布も直ちに決定できるように見える。

しかし、実際にこの方法が最も威力を発揮するのは磁気モーメント分布に周期性がある場合であって、その時には実空間内の3次元の周期に対応した情報が逆格子空間の一つの点に集中し、断面積はこの位置にデルタ関数型のピークを作るので、十分に強い回折反射強度がえられるためである。反強磁性体、強磁性体、非整合周期磁性体等で中性子回折が強力な手段であるのは、これらの物質は全て磁気的な周期構造をもつためである。また、逆に全く周期性のない磁気モーメント分布の場合には、散乱中性子は逆格子空間の中に均一に広く分散してしまうために、精度の高い実験を行うことは極めて困難であって、常磁性体やこれから述べるスピングラスなどは正にその例である。

理想的なカノニカルスピングラスは磁気モーメントが出鱈目の方向を向いたまま凍結しており、磁気的周期を持たないところにその特徴がある。従って、帯磁率や内部磁場には磁気モーメントが凍結したという証拠が歴然と現れるが、中性子の回折反射は見ることができない。このような理想的なスピングラスでは  $r_{ij}$  だけ離れた位置にある異なったモーメントの間には全く相関がなく、そのオーダーパラメータ  $q$  は自己相関関数  $\langle S_i \rangle^2$  で決まり、その結果上の式で与えられる断面積は散乱ベクトル  $Q$  あるいは散乱角によらない一定値となる。

理想的なスピングラスでは特にあえて磁気構造を決める必要はないようなものではあるが、実際の合金型スピングラスではこれを構成する原子の磁気モーメントに分布があることが多く、これを決定する必要がある。しかし、その場合も中性子散乱では情報が逆格子空間内に広く分散してしまい、有力な手段とは言い難い。このような場合に、これまで磁気構造決定法としては中性子散乱に圧倒されていた実空間内で磁気モーメント分布を測る方法が有力となる。メスバウワー効果はこのような方法の一つであって、特にFe位置でのnuclear hyperfine field(これからは簡単のために内部磁場という)を測定し、これから磁気モーメントの大きさの分布を決定する。

幸い、大阪大学では中性子散乱の研究の伝統とともに、ラジオアイソトープ総合センターではメスバ

\*現在広島工業大学に所属

ウワー効果を測定する強力な態勢と、スピングラス系の研究には欠かせない低温センターも完備していて、上に述べたような研究を進めるのには非常に恵まれた環境である。

それで、ここでは大阪大学のこれらの研究施設を利用し、メスバウワー効果を用いた合金型スピングラスの磁気モーメント分布の測定の例について述べ、メスバウワー効果が中性子散乱を補う磁気モーメント分布の決定法であることを説明したい。

### Fe-Cr系

Fe-Cr系はFe側では強磁性、Cr側で反強磁性であるが、その中間濃度の所には高温では強または反強磁性であるが低温でスピングラスが形成されるいわゆるリエントラントスピングラス相がある。この相で強磁性あるいは反強磁性相からどのような過程をへてスピングラスに移行するかということは、理論的にも面白い問題で多くの研究がされているが、実際に磁気モーメント分布がどのように変化してゆくかについては、中性子散乱の研究では明らかにはできてない。

図1はメスバウワー効果を用いて求めた $\text{Cr}_{78}\text{Fe}_{22}$ のFeの原子核の位置での内部磁場分布の測定結果である。図の横軸は磁場の大きさで、縦軸は磁場の出現頻度である。この試料では $T_c$ はほぼ100K、スピングラス凍結温度 $T_f$ は約25Kであるが、強磁性相では磁場分布は二つの山に分かれている。低温でスピングラス相になると、これらの山の位置が急速に高磁場側に移動するとともに、低磁場側の山が急速に小さくなり、遂には高磁場側の単一のピークに統一されてしまう。この図に示されたような実験は、さらに温度を変え、試料の濃度を変えて行ってみたが、どの濃度の試料でも上に述べたような結論、すなわち高温の強磁性または反強磁性の相では磁場の分布は二つの山を作り、低温のスピングラス相にはいると高磁場側の単一の山に統一されてしまうこと、および急速に内部磁場の大きさが増すことは、常に共通した結果として現れる。

一例として図2にCr濃度が高く、高温で反強磁性であるリエントラントスピングラス $\text{Cr}_{85}\text{Fe}_{15}$ の実験結果を示しておく。この図はこの試料について図1に示したような内部磁場頻度曲線を求め、その結果からまとめた

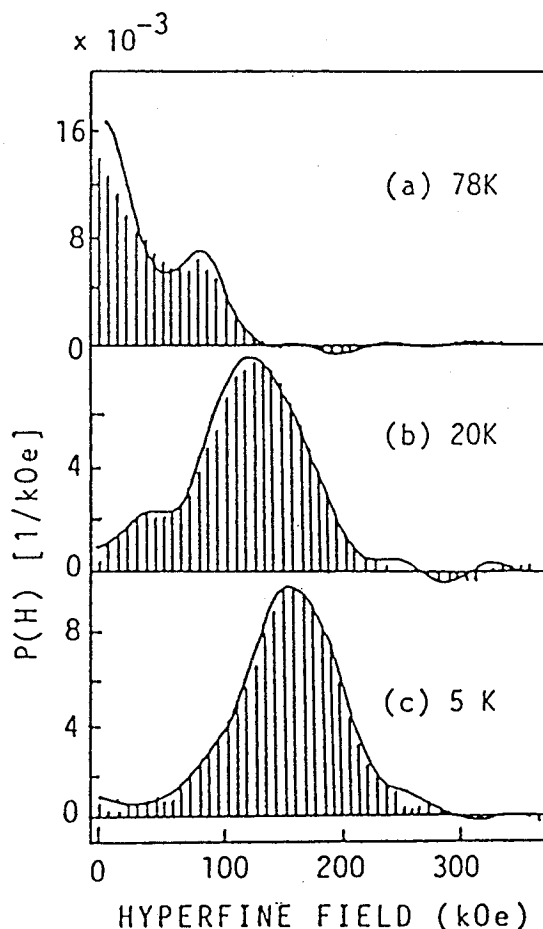


図1  $\text{Cr}_{78}\text{Fe}_{22}$ 中のFeの内部磁場分布 $P(H)$  :  
メスバウワー吸収スペクトルからWindow  
(曲線)およびHesse(棒ヒストグラム)で求  
めた。

ものであるが、上の絵は二つの山の強度比の温度変化で、下の図はおのおのの山の頂上に対応する磁場の大きさの温度変化である。低磁場側の山の強度が  $T_f = 20\text{K}$  から急激に減少し最低測定温度  $5\text{K}$  では殆ど消失していること、ふたつの山の頂上に対応する磁場の大きさが急に増していることもこの図から明らかであって、これらの性質がCr-Feの一般的な性質であることを示している。

このような実験結果をどう解釈するかについてはここで詳しく議論するゆとりはないが、この系では強磁性相互作用と反強磁性相互作用が競合しているのであるから、これに対応して強および反強磁性クラスターが存在することが、ふたつの分離した山が見られることの原因であろう。また、低温になると、磁気モーメントの横成分の凍結によって、反強磁性と強磁性のふたつの相が区別出来なくなり、均一なスピングラス相に移り変わってゆくことがこの実験結果の原因であろう。

### Fe-Al系

$\text{Fe}_3\text{Al}$ は強磁性を示す規則格子合金であるが、この組成よりAlを僅かに多く含むFeAl合金は常温付近では強磁性であるが、低温ではスピングラスとなるリエントラントスピ

ングラスである。ただ、この系は規則格子のスピングラスという珍しい物質であるだけでなく、温度が下がった時強磁性相から直接スピングラス相に転移するのではなく中間に超常磁性相を経由するという非常に奇妙な性質があり、その原因についても幾つかのモデルはあるものの、本当の所はまだよくは分かっていない。そのためにスピングラス相でどのような磁気モーメント分布をもっているかを知ることは大きな意味があるが、この場合も中性子散乱は必ずしも決定的な手法ではない。

図3はFeAl型の規則格子を作っている $\text{Fe}_{30}\text{Al}_{70}$ でメスbauer効果を用いて測定した内部磁場の分布の温度変化を示してある。ここでも上の絵は各々の山の強度比の温度変化で、下の絵は山の頂上の磁場の温度変化である。帯磁率測定から決定したこの物質の $T_f$ は約 $100\text{K}$ であるが、それより上の温度では黒い丸で表した高磁場側の山の強度は殆どゼロに近いが、 $T_f$ 以下ではその強度も磁場の大きさも急激に増加する。一方、白い丸で表した低磁場側の山は $T_f$ より上では常磁性であることを反映して、そ

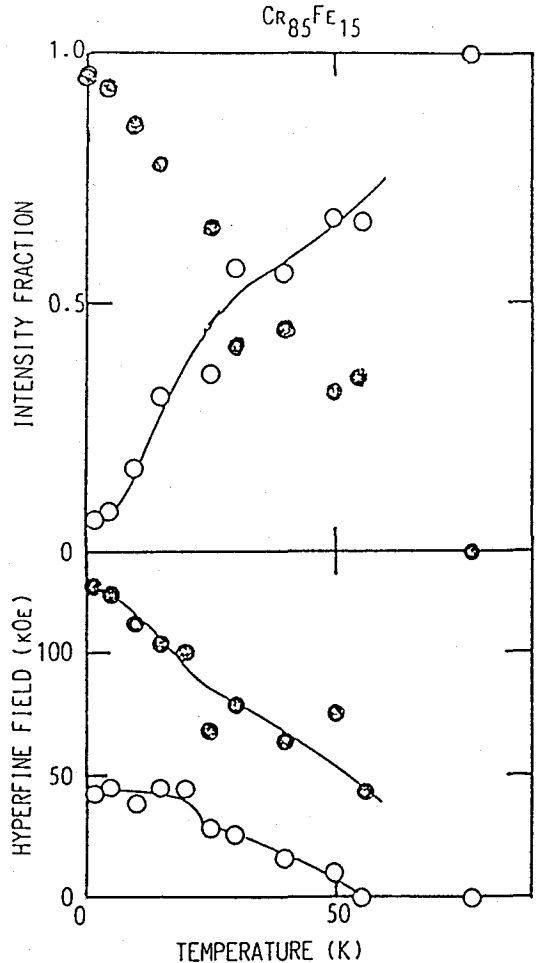


図2  $\text{Cr}_{85}\text{Fe}_{15}$ の内部磁場分布の温度変化：  
P(H)の二つの山の強度比と位置、  
●は高磁場、○は低磁場の山に対応する。

の磁場の大きさはほぼゼロであるが、その強度は90%にもなっている。 $T_f$ 以下ではこの山のピークの磁場はゼロから増加を始め有限の大きさをもつようになるが、その強度比は急速に減少する。さらに、Fe-Cr系とは反対に極低温では低磁場側の山はさらに二つに分離し、従って低温でのスピングラス相は三つの相から成り立っていることがわかる。

この結果から推定できるスピングラス相での磁気モーメント分布のモデルについても、詳しい議論は省略するが、そのあらまは次の通りである。Fe-Al合金ではこれまでの中性子散乱の研究の結果から、Fe原子はその第1最近接位置に他のFe原子を4個以上持つときのみ磁気モーメントが生成され強磁性的に結合するというモデルが信じられているが、これを信じてFe-Al型規則構造を持つ $Fe_{70}Al_{30}$ でFeを4個以上最近接位置を持つ確率を、2項分布から計算すると0.58となるが、これは高磁場側の山の強度比0.60と極めて近い。

従って高磁場側の山安定なモーメントを持ち強磁性的に結合しているFeによるものと考えられる。これに対し、低磁場側の二つ山は高温の強磁性相や常磁性相では磁気モーメントを持たないFeに、低温のスピングラス相で誘起された磁気モーメントによるものと考えることができる。このようなFeにはAl原子で隔てられた第二隣接原子から反強磁性相互作用が働くので、強および反強磁性の二つの相互作用が競合し、その結果スピングラス相も形成されまた二つのクラスターに対応して山がさらにふたつに分かれるのであろう。

こういうモーメント分布モデルを確かめるために、同じような実験を組成の異なる $Fe_{78}Al_{22}$ や原子配置の異なる $Fe_3Al$ 規則構造を持つ $Fe_{70}Al_{30}$ でも行ったが、いずれの場合にも図3の結果と極めて類似の挙動が観測された。また、それらでは低温での高磁場側の山の強度比の実測値はFeAl型 $Fe_{70}Al_{28}$ で0.68、 $Fe_3Al$ 型 $Fe_{70}Al_{30}$ では0.57であった。これに対して最近接位置にFeが4個以上存在する確率はそれぞれ0.67、0.57であって、いずれも実験結果とよく一致する。

#### 終わりに

以上のようにメスパワー効果を用いた内部磁場の測定はスピングラスの磁気モーメント分布には有効な方法であり、中性子散乱法とは相補的な手段であることが分かって頂けたことと思う。また、このような研究を行うのに大阪大学は低温センターを含めて優れた施設群を備えており、ここで仕事ができることは(あるいはできたことは)極めてハッピーなことであり、あらためて感謝の意を表したい。

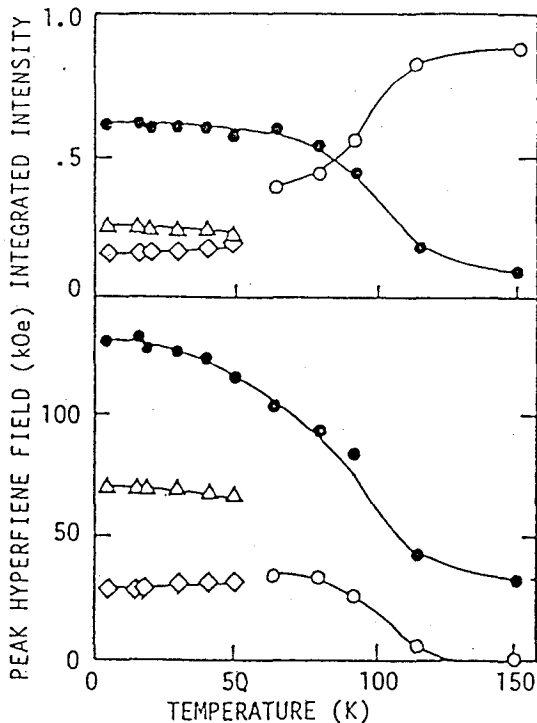


図3  $Fe_{70}Al_{30}$ の内部磁場分布の温度変化：  
P(H)曲線に現れた2つまたは3つの山の強度比と温度変化