

長周期スピン整合相中の部分的無秩序状態の熱的解析

竹田和義

(平成7年1月22日受理)

Thermal Study of Freedom of Spin in the Partially Disordered State in Long-period Commensurate Magnets

Kazuyoshi Takeda

(Received January 22, 1995)

The study of freedom of spin in the partially disordered state in the long-period antiferromagnetic spin structure has been reviewed. In the commensurate phase with the wave vector k $(0, 0, k)$ for $k=13/14$ and $k=7/9$ in PrCo_2Si_2 , paramagnetic ions with individual entropy $k_B \ln 2$ have been found to be immersed regularly by the direct analysis of the observed heat capacity in zero external magnetic field. The partially disordered spins in the two-dimensional triangular antiferromagnetic lattice have been also detected in the magnetic structure $(\sqrt{7}, \sqrt{7}, 2)$ of CuFeO_2 .

1. はじめに

強磁性体あるいは反強磁性体の磁気モーメントは、磁気転移温度以下の温度領域で各々の結晶の容易軸方向に配向しはじめ、強磁性体の場合はすべて同一方向に、反強磁性体の場合は互に逆方向に揃うのが一般的である。しかし磁気モーメント μ_i ($i=1, 2, \dots$) 間の相互作用 J_{ij} が競合している物質では、温度あるいは磁場の変化とともに磁気モーメントの向きが長周期的に変化する相が逐次出現することがしばしば起こる。Fig.1 に代表的な例を模式的に示した。スクリュウ型 (a) は、 MnO ではじめてその発現機構が理論的に解明されたものとしてよく知られている¹⁾。逆位相型 (b) および振動型 (c) は Tm などの重希土類金属や、それらを含む化合物で出現し易く温度・磁場の変化に対応して振動周期を特徴づける波数ベクトルが逐次変化したり、場合によってはスクリュウ構造またはコーン構造を伴ったりする²⁾。磁気異方性の強さも構造決定に大きくかかわっている。

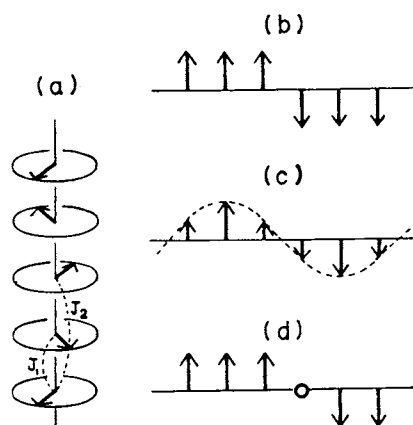


Fig.1 Magnetically modulated systems : (a) screw type, (b) antiphase type, (c) sinusoidal wave type and (d) partially disordered antiphase type.

一方長周期構造に関する理論的研究は、主として次隣接の磁気モーメント間の相互作用まで考慮したANNNIモデル (Axial Next Nearest Neighbor Ising model) に基づいて展開され、「悪魔の花」と呼ばれる多様な相の出現を予想させるなど、現在でもホットな話題を提供している³⁾。

本稿ではこれらの相の移行過程にFig.1の(d)の白丸で示したような無秩序状態の磁気モーメントが周期的に存在することを熱的解析を通して明らかにする^{4) - 6)}。

2. 磁氣的長周期構造の発現機構

以後の議論に必要な程度に、ここで空間的長周期構造の発生原因について述べる。結論的には2種以上の競合する相互作用またはRKKY型などの長距離型相互作用が磁気モーメント間に動くことが主要な要因であり、それに結晶の磁気異方性エネルギーが加わって多様な周期構造を呈するようになる。

例としてFig.1(a)に示すような一次元系で考えてみよう。結晶の異方性は考えないで、磁気モーメントを担うスピンの対称性をハイゼンベルグ的にとった場合、系のエネルギーはハミルトニアン

$$H = - \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} S_i \cdot S_j \quad \dots\dots\dots (1)$$

から求まる。これを最低にする条件をさがすことを考える。 J_{ij} 図に示したように第1(J_1)および第2(J_2)隣接までしか効かないとすると、 J_1, J_2 ともに同一符号の場合はスピンの向きは強磁性的となり競合は起きない。しかし、符号が競合し(例えば $J_2 < 0$)、しかも $|J_2| > |J_1/4|$ の条件を満たすと、図のようなスクリュウ構造が実現する。これは周期構造発生には相互作用の競合が条件となることを示す。この例では結晶の異方性を考えなかったが、Fig.1(a)の場合には軸に垂直な面内における磁気異方性エネルギーが最低になっているはずである。

上の例では、温度の効果は考えなかったが、有限温度になると、内在する種々の波長の自由度に対応した自由エネルギーのエントロピー項(ST, S ; エントロピー, T ; 温度)が大きく寄与するようになり、系全体は与えられた外部条件(温度・磁場)のもとで自由エネルギーを最小にする相を逐次示すようになる。

温度、磁場の変化に応じて14種の長周期が出現するCeSbの磁気相図は、その代表的な例である⁷⁾。この相図はその後のANNNIモデルの新しい展開に大きく寄与し、CeSbの相図自体が理論的な明らかにされたのも、そう古いことではない⁸⁾。本稿で述べる部分的無秩序状態も、実験的にはこの系で指摘されてはいたが、CeのKondo格子の問題との絡みもあり、イジングモデルに基づく理論と対応させるにはこの系より単純な系が望まれていた。本研究で述べ

る PrCo_2Si_2 および CuFeO_2 は第1近似ではイジング系で取扱える。なお「悪魔の階段」を意識した金属Hoの研究も展開されていることを付記しておく。

3. PrCo_2Si_2 にみられる部分的無秩序状態

Fig.2は PrCo_2Si_2 の結晶構造(tetragonal: $a = 3.94 \text{ \AA}$, $c = 9.94 \text{ \AA}$)と零磁場下での熱容量を示す。磁気モーメントは Pr^{3+} の4f³電子が担い、Coは磁性を示さないことがわかっている。最低温度でのスピン構造は図に示したようにc面内で強磁性を保った層が、c軸方向に交互に反強磁性的に並び、全体として反強磁性構造になっている^{10) - 13)}。興味の中心は、温度・磁場の上昇に伴って、この強磁性層がc軸に沿って必ずしも交互に向きを変えずに、周期的にミスマッチを生じるようになることである。その周期を指定するのに波数ベクトル $k(0, 0, k)$ を用いると($2\pi/c$ を単位として)、Fig.3の中性子回折の実験結果からも明らかのように、 $T_1 \sim 9\text{K}$ 以下では反強磁性相の $k=1$ が現われるが、 $T_1, T_2 (\sim 17\text{K})$ を境に各々 $k=13/14, k=7/9$ の相が出現してくる^{10) - 12)}。この図で T_1, T_2 あたりの境界領域に温度の幅があることに注意しておこう。なお、 $T_N = 29.7\text{K}$ の λ 型の異常は常磁性相への転移に対応している。

3.1 ^{141}Pr の核比熱と Pr^{3+} の電子状態

ここでは磁気モーメントを担う Pr^{3+} の電子状態を ^{141}Pr 核の状態から調べてみる。Fig.2およびFig.4の零磁場下の熱容量 C_p は3K以下ではほぼ E/T^2 に比例して急に大きくなる。事実5K以下でCは

$$C = E/T^2 + \gamma T + BT^3 \quad \dots\dots\dots (2)$$

$$E = 8.80 \times 10^{-1} \quad [\text{J} \cdot \text{K} \cdot \text{mol}^{-1}]$$

$$\gamma = 5.00 \times 10^{-3} \quad [\text{J} \cdot \text{K} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-2}]$$

$$B = 5.84 \times 10^{-4} \quad [\text{J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-4}]$$

で再現でき、2K以下では T^{-2} の項のみが大きく効く。電子

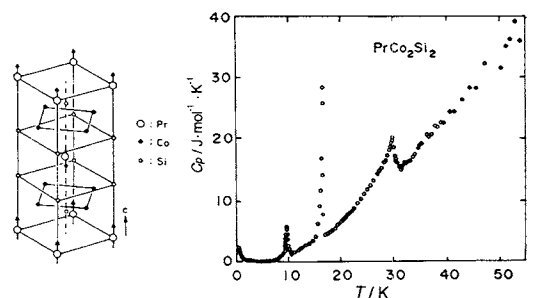


Fig.2 A schematic crystal structure and the result of heat capacity measurement of PrCo_2Si_2 at low temperatures.

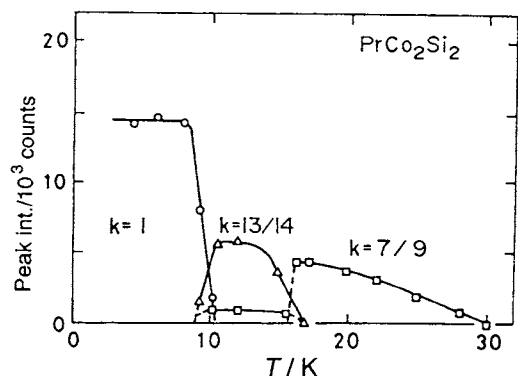


Fig.3 Temperature dependence of the commensurate spin structures along $(0,0,k)$ direction in PrCo_2Si_2 studied by the neutron diffraction experiment⁽¹⁰⁾⁻⁽¹²⁾.

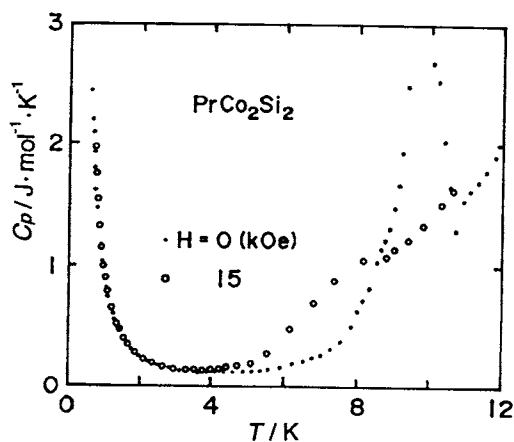


Fig.4 Low temperature heat capacity of PrCo_2Si_2 in zero and applied field ($H//c$ -axis). The increase below 4K reflects the contribution from the nuclear heat capacity of ^{141}Pr .

比熱の寄与は、伝導電子によるRKKY型の長距離相互作用の存在を示唆している。第3項は格子比熱による寄与を示す。Co核の比熱は仮にあるとしても一般には 10^{-2}K 以下の低温にあり、0.6K以上の今回の測定には出現していない。したがって T^{-2} の項は ^{141}Pr (自然存在度100%，核スピン $I=5/2$)の核比熱以外には考えられない。Fig.4の $H=15\text{kOe}$ の磁場中 ($H//c$ 軸)で測定した熱容量の結果を見ると、 $T_1 \approx 9\text{K}$ 近傍の電子スピン系の協力現象によるピークはつぶれ、この磁場下で $k=13/14$ の相に入っているにもかかわらず、核比熱は零磁場の場合とまったく差はない。つ

まり電子系は協力現象により大きく磁場の影響を受けているのに、核スピンは自分の属するPr原子の $4f^2$ 電子から $1.4 \times 10^3\text{kOe}$ (後述)程度の内部磁場を受け、他の原子の電子状態や 15kOe 程度の外部磁場には影響されないのである。

ここで核比熱から ^{141}Pr の内部磁場 H_h および電子状態を調べる。いま電子系の合成角運動量を J とする核スピン I との間に超微細相互作用 A が働き実効的に H_h は

$$H_h = A \langle J \rangle / g_N \mu_N \quad (3)$$

となる。 g_N, μ_N はPr核の g -因子、核磁子である。Prの場合、核の電気的四重極相互作用は無視できて H_h は効かない。核スピン系はこの磁場のもとで

$$E_z = g_N \mu_N I_z H_h \quad (I_z = 5/2, 3/2, \dots, -5/2) \quad (4)$$

のエネルギー準位に分裂し、これに対応したシュottキー型の核比熱 C_N を与える。具体的に計算すると

$$\begin{aligned} C_N / k_B N &= C_N(E_z / k_B T) / k_B N \\ &\approx 2.84 \left(\frac{g_N \mu_N H_h}{k_B T} \right)^2 \\ &\quad (k_B T \gg g_N \mu_N H_h) \end{aligned} \quad (5)$$

となり、特徴的な比熱の山より高温側の温度域で T^{-2} 項が出て来る。これと実測値との比較から

$$g_N \mu_N H_h / k_B = 0.20 \pm 0.01 \quad (6)$$

となり、慣習にしたがって H_h を周波数に換算すると 4170MHz となる。これは Pr^{3+} の自由イオン状態にある電子系が核に与える値 4372MHz ⁽¹⁴⁾に極めて近いことがわかった。換言すれば、Prの電子状態は、スピン軌道相互作用 $\lambda L \cdot S$ で決まる最低エネルギー状態にあり J ($J+1$)重に縮退した準位 ($J=L-S=4$)が、さらに弱いtetragonalな結晶場で分裂し、その基底二重項はすぐ上の準位と 127K の開きがあるという見積り^{(10), (11)}に合致している。なお $J=4$ の値は、磁化の実測値から得られた値 ($g_J=4/5$)と一致している。現在、低温への核比熱測定の追認を行っている。

3.2 部分的無秩序の生滅とエントロピー変化

Fig.2において T_1 の温度で $k=1$ から $k=13/14$ の相へ、 T_2 ではさらに $k=7/9$ の相へ転移することを述べたが、中性子回折からは部分的無秩序状態のスピン存在は判明していない。一方熱容量からはFig.3に見られるように $T_1=9.65\text{K}$, $T_2=16.4\text{K}$ に鋭いピークを示す。Fig.5は T_1 近傍の熱容量は磁場依存性を示す。この図を用い転移に伴う異常エントロピー ΔS の温度変化

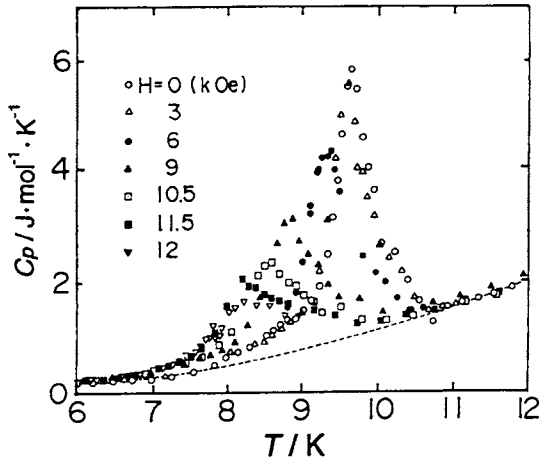


Fig.5 Field dependence of heat capacity of PrCo_2Si_2 around the partially disordered transition temperature $T_1 = 9.65 \text{ K}^{(4), (5)}$ ($H \parallel c\text{-axis}$)

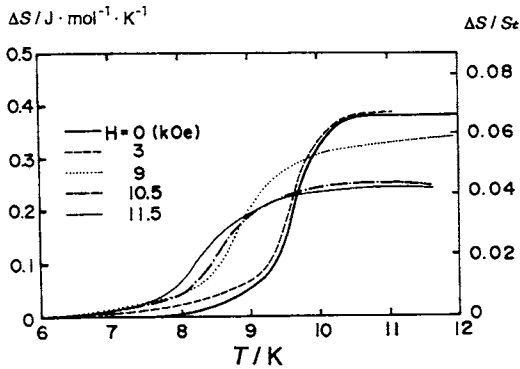


Fig.6 Field dependence of the magnetic entropy of PrCo_2Si_2 around the partially disordered transition temperature $T_1 = 9.65 \text{ K}^{(4), (5)}$ ($S_f = Nk_B \ln 2$)

$$\Delta S = \int_{t_1}^{t_2} \Delta C_p / T \cdot dT \quad \dots\dots\dots (7)$$

を求めると Fig.6 のようになる (ΔC_p は Fig.5 における点線より上の異常熱容量)。 $t_1 = 7.8 \text{ K}$ から $t_2 = 10.7 \text{ K}$ の温度領域で

$$\begin{aligned} \Delta S &\equiv \Delta S_1 = (0.066 \pm 0.005) Nk_B \ln 2 \\ &\cong 1/14 \cdot Nk_B \ln 2 \quad \dots\dots\dots (8) \end{aligned}$$

の値を得た。これは全スピン数の $1/14$ が各々 $k_B \ln 2$ のエントロピーをこの温度領域で消耗したことを示唆している。 $k = 1$ から $k = 13/14$ への転移が部分的無秩序を含まないと

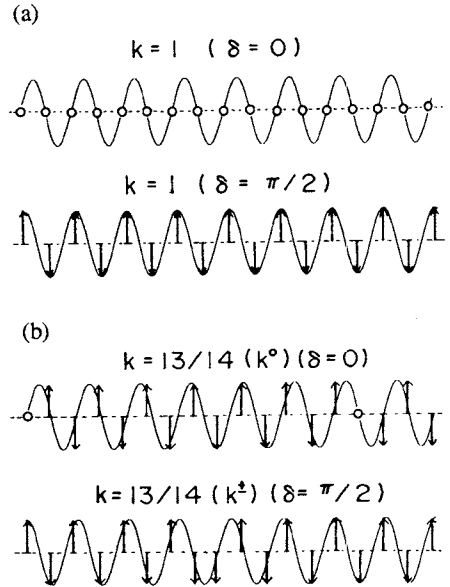


Fig.7 Long-period spin arrangement under the sinusoidal exchange field.

すると、このような大きいエントロピー変化は示さないはずである。だとすると (8) 式を与える長スピン構造はどのようなになっているのであろうか。

一方 T_2 近傍についても同様な解析から $t_1 = 15.0 \text{ K}$ と $t_2 = 17.0 \text{ K}$ の温度領域で

$$\begin{aligned} \Delta S_2 &= (0.12 \pm 0.01) Nk_B \ln 2 \\ &\cong 1/9 \cdot Nk_B \ln 2 \quad \dots\dots\dots (9) \end{aligned}$$

を得た。

3.3 現象論的解釈

上述したような異常エントロピーを与えるスピン構造は、磁気モーメント間に RKKY 型の長距離相互作用を考慮した岩田による分子場理論から定量的な検討ができるが⁽¹³⁾、ここでは伊達による振動型交換磁場モデルによって直観的な解釈を試みる⁽¹⁵⁾。このモデルの仮定には、RKKY 型の相互作用が意識されていると思われる。磁気モーメントは各々大きさは一定であり、その向きはその位置 r で決まる振動型局所磁場 $h(r)$

$$h(r) = h \sin(k \cdot r + \delta) \quad \dots\dots\dots (10)$$

の向きによって定まるとするものである。 PrCo_2Si_2 では周期構造は c 軸のみに現われ、 $h(r)$ の向きもこの軸方向で上下を繰り返す。 $k(0,0,k)$ として $k=1$ および $k=13/14$ に対応する $h(r)$ およびスピンの向き図示すると Fig.7 のようになる (ただし、見やすくするためにスピンの向きは c 軸に

直交させて画いてある)。 $k=1$ ($\delta=\pi/2$) の場合は通常の反強磁性体であるが、 $k=13/14$ ($\delta=0$) の場合には14個に1個の割合で分子場のかからない、つまり無秩序 (自由度2) のスピンの出現することがわかる。図から推定されるが (b) で δ を少しずらせると、それまでに無秩序であったスピンにも $h(r)$ が生じその方向にスピンは配向するが全スピンのベクトル和は零のままである。この試料では、 c 軸に磁場をかけると $H_1=12\text{kOe}$ で飽和磁化 M_0 の $1/14 \cdot M_0$ の磁化が階段状に出現することが観測されており、無秩序のスピンのその方向に配向すると解釈できる。実は磁化は更に強い磁場で逐次階段状に変化するが、それらも同様に考えて説明できる。一方 $k=1$ の相は $\delta \neq 0$ の位相を持つが $k=13/14$ では $\delta=0$ に位相スリッピングを起こしている。以下では部分無秩序を含むスピン構造を、例えば $k=13/14$ の場合 $k^\circ=13/14$ (0+-+-+-+-+-+-) のように記すことにする。ここで0は無秩序スピン、+ (-) は上向き (下向き) スピンを示す。したがって (7) (8) 式で示したように t_1 から t_2 の温度領域で $k^\circ=13/14$ の部分無秩序が存在し、 t_2 以上の温度になると部分無秩序のない $k^\circ=13/14$ (++-+-+-+-+-+-) または $k^\circ=13/14$ へ移行するように位相のずれが起ることを暗示している。

同様に考えると T_2 での転移エントロピーの値からスピン構造が推定できる。この場合は (10) 式で $k^\circ=7/9$ ($\delta=0$) とした分子場がその構造を決定する。図に書くと9個に1個の割合で部分的無秩序スピンが出現することがわかる。ただしこの場合も T_2 のピークを生ずる温度幅の中で $k^\circ=7/9 \rightarrow k^\circ=7/9$ への位相スリップが要請される。この概念は実験的にはじめて言及した概念である。なお T_1 , T_2 を中心とする狭い温度巾で生滅する部分的無秩序状態は、別の断熱磁化の実験で確認している⁵⁾。

以上の議論では各々の磁気モーメントの大きさは常に伸び切った一定の値をもち、その方向づけは $h(r)$ が決定するとした。低温ではそれで良いが、ネール温度近くになると熱的ゆらぎを考慮しなくてはならない。岩田の理論ではこの効果についての検討もされている¹³⁾。

3.4 部分的無秩序の三次元的描像

PrCo_2Si_2 は磁気的には三次元系であるが、長周期は c 軸方向のみで出現した。したがってその解釈には一次元モデルに基づく現象論に従った。そこでは c 面内の強磁性面を1個のモーメントに対応させてきた。これは三次元的立場に戻って考えれば例えば $k^\circ=13/14$ の相は14層に1層の割合で c 面内のスピンのすべてが無秩序になるというのである。このことは一見不思議に思える。実験は c 軸の鎖内のフラストレーションを、各鎖ごとに独立に解消するより、すべての鎖が横方向の位相も揃えて解消する方が現実的であることを示唆している。理論的にもこのあたりの事情ははっ

かりしていないように思われる^{16), 17)}。

4. 二次元三角格子磁性体における部分無秩序状態 — CrFeO_2 —

三角格子反強磁性体はフラストレーションの最も強い系の典型である¹⁸⁾。二次元格子点上に面内等方的連続値をとり得るXYスピンを乗せた場合には、そのフラストレーションを最小にするように各スピンは互に 120° の角度をなして配向し、その面に垂直に定義されるカイラルベクトルを秩序変数とする興味ある相転移が予想されている。ハイゼンベルグ系の場合は更に面から立ち上がる成分の秩序変数が加味され新しいタイプの相変化が、また量子効果の強い (スピン値 $S=1/2$) 系では、共鳴原子価結合 (RVB) 状態に対応する基底状態も予想されている。これらの場合は部分的無秩序は起らないが、イジングスピン系の場合には起り得る。最近接相互作用のみ効くイジング系では絶対零度でもマクロ数のスピンの無秩序に残るワニエ状態になっているが、第二近接相互作用まで働く場合には、有限温度領域で2/3のスピンの秩序状態に入り、残りの1/3のスピンは無秩序状態になり得ることが、目片により指摘されていた¹⁹⁾。この部分的無秩序は更に低温で秩序状態に移る。この転移の様子はその後の計算機実験等で詳しく調べられている²⁰⁾。しかし現実の系でこの無秩序を観測した報告はなかった。

目片等は最近の CuFeO_2 の帯磁率・メスバウアー効果・中性子回折等の実験により、この物質の長距離秩序状態の中に部分的に常磁性状態の磁気モーメントが共存し、それらはさらに低温で別の長距離秩序に組み込まれることを確認した^{21) - 23)}。我々は熱解析からこの無秩序状態にあるスピンの自由度を見積った⁶⁾。ただしこの状態のスピン数は全体の1/3でなく1/5である。

CuFeO_2 では Fe^{3+} が磁性を担う。常磁率の高温部 (150K以上) はキュリーワイス則に従い、ワイス温度は $\theta=-90\text{K}$ である。磁気モーメントは Fe^{3+} の $6S$ 状態に対応する大きさを示す。磁気転移温度は Fig.8 の熱容量測定結果にも現れているように $T_N=14.0 \pm 0.5\text{K}$ であり、 $|\theta/T_N|=6$ という値はこの系のフラストレーションの大きさを反映している。 T_N では通常の磁気相転移のように臨界指数を与えるような比熱の発散は見られず、三角格子に特徴的なカスプ状の異常を示す²⁰⁾。中性子回折実験やメスバウアー測定実験から $T \cong 11\text{K}$ あたりに部分無秩序を含む5副格子構造が出現することが主張されていた。Fig.8 にその磁気構造 ($\sqrt{7}, \sqrt{7}, 2$) を、Fig.9 に c 面内のスピン構造を示す。さらに低温では部分無秩序のない4副格子構造 ($\sqrt{3}, 2, 2$) を示す。この相境界では Fig.8 のように一次転移に伴うエントロピー ΔS の温度変化を示すと Fig.10 のように9.5K から13K にかけて

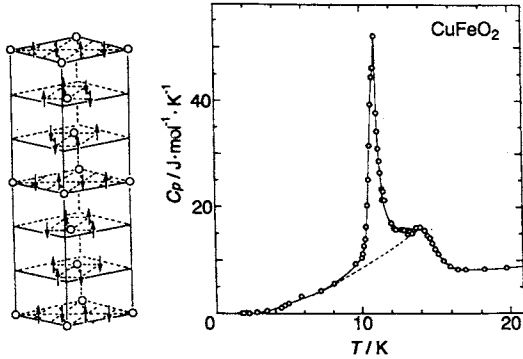


Fig.8 A schematic spin arrangement of the five-sublattice structure and the result of heat capacity measurement of CuFeO_2 around the partially disordered transition temperature⁶⁾.

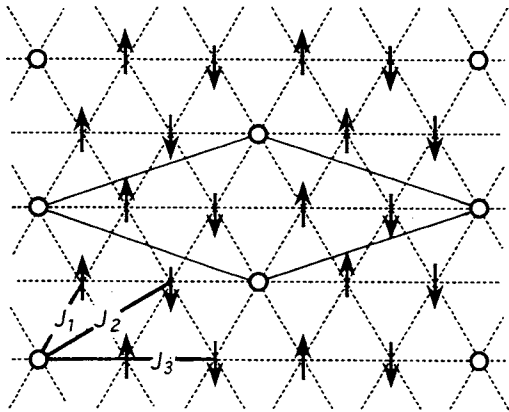


Fig.9 A model for the five-sublattice structure of the two-dimensional triangular Ising antiferromagnet with the third next-nearest-neighbor interaction²³⁾.

急に変化しており、その値はすべての Fe^{3+} イオン ($S=5/2$) が常磁性を示した場合の磁気エントロピー $S_t = Nk_B \ln(2S+1)$ の $1/5$ に対応し、部分無秩序を含む5副格子モデルが妥当な証拠になっている。3副格子あるは、4, 5副格子などのどの構造をとるかは、有効な隣接相互作用の種類と大きさ、および温度領域に依存する。目片等は第3近接まで考慮したイジングモデルに基づき CuFeO_2 の相図を検討している²³⁾。

5. おわりに

良く知られていた CeSb 系に次いで、 PrCo_2Si_2 , CuFeO_2 においても長周期スピン整合相内に部分的無秩序状態にあ

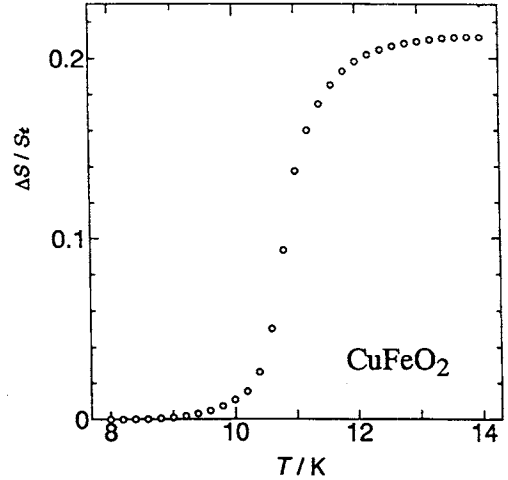


Fig.10 Temperature dependence of magnetic entropy of CuFeO_2 around the partially disordered transition temperature⁶⁾. ($S_t = Nk_B \ln(2S+1)$)

るスピンの共存することを熱的解析から確かめた。これらは狭い温度領域で、スピン自由度を出し切る常磁性状態にあり、外部磁場下ではブリルアン関数に従うような磁化を示す印象を与える。しかしこの無秩序は互に競合する複数の交換磁場の相殺した環境下で実現されているものであり、通常の常磁性スピンとは異なるはずである。事実10kOeの外部磁場下で CuFeO_2 の熱容量を測定しても、零磁場下の場合とまったく変化していないように見える。因みに3つの相互作用 J_1 , J_2 , J_3 は各々 -80K , -40K および -25K と見積もられており²³⁾、これらの競合したで無秩序が生じていると思われる。

文 献

- 1) A. Yoshimori, *J. Phys. Soc. Jpn.* **14**, 807 (1959).
- 2) 例えば、芳田 奎, 「磁性 I」 p.95 (朝倉書店).
- 3) 例えば、W. Seike, in *Phase Transition and Critical Phenomena* Vol.15, ed. C. Domb and J. L. Lebowitz (Academic Press 1992).
- 4) K. Takeda, K. Konishi, H. Deguchi, N. Iwata and T. Shigeoka, *J. Phys. Soc. Jpn.* **60**, 2538 (1991).
- 5) K. Takeda, K. Konishi, H. Deguchi, N. Iwata and T. Shigeoka, *J. Magn. Magn. Mater.* **104-107**, 901 (1992).
- 6) K. Takeda, K. Miyake, M. Hitaka, T. Kawae, N. Yaguchi and M. Mekata, *J. Phys. Soc. Jpn.* **63**, 2017 (1994).
- 7) 例えば、J. Rossat-Mignod, P. Burlet, J. Villain, H.

- Bertholin, W. Tcheng-Si, D. Florence and O. Vogt, *Phys. Rev.* **B16**, 440 (1977) ; J. Rossat-Mignod, P. Burlet, S. Quezel, J. M. Effantin, D. Delacotem H. Bartholin, O. Vogt and D. Ravot, *J. Magn. Magn. Mater.* **31-34**, 398 (1983) .
- 8) T. Kasuya, Y. S. Kwon, T. Suzuki, K. Nakanishi, F. Ishiyama and T. Takegahara, *J. Magn. Magn. Mater.* **90-91** 389 (1990) .
- 9) R. A. Cowley, D. A. Jehan, D. F. McMorrow and G. J. McIntyre, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 1521 (1991) .
- 10) T. Shigeoka, N. Iwata, H. Fujii, T. Okamoto and Y. Hashimoto, *J. Magn. Magn. Mater.* **70**, 239 (1987) .
- 11) T. Shigeoka, H. Fujii, K. Yonenobu, K. Sugiyama and M. Date, *J. Phys. Soc. Jpn.* **58**, 394 (1989) .
- 12) T. Shigeoka, N. Iwata, Y. Hashimoto, Y. Andoh and H. Fujii, *Physica* **B156-157**, 741 (1989) .
- 13) N. Iwata, *J. Magn. Magn. Mater.* **86**, 225 (1990) .
Bi Jin, N. Iwata, T. Shigeoka, K. Takeda, K. Konishi and H. Deguchi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **32 Suppl.** **32-33**, 334 (1993) .
- 14) B. Bleaney, in. *Magnetic Properties of Rare Earth Metals*, 383, ed. R. J. Elliot (Plenum Press, 1972)
- 15) M. Date, *J. Phys. Soc. Jpn.* **57**, 3682 (1988) .
- 16) K. Nakanishi, *J. Phys. Soc. Jpn.* **58**, 1296 (1989) .
- 17) F. Rothhaus and W. Selke, *J. Phys. Soc. Jpn.* **62**, 378 (1993) .
- 18) 例えば, 長谷田泰一郎, 目片 守, 「物理学最前線26」 p.129 (共立出版, 1990) .
- 19) M. Mekata, *J. Phys. Soc. Jpn.* **42**, 76 (1977) .
- 20) 例えば, S. Fujiki, K. Shutoh and S. Katsura, *J. Phys. Soc. Jpn.* **52**, 1531 (1983) .
- 21) S. Mitsuda, H. Yoshizawa, N. Yaguchi and M. Mekata, *J. Phys. Soc. Jpn.* **60**, 1885 (1991) .
- 22) M. Mekata, N. Yaguchi, T. Takagi, S. Mitsuda and H. Yoshizawa, *J. Magn. Magn. Mater.* **104-107**, 823 (1992) .
- 23) M. Metaka, N. Yaguchi, T. Takagi, T. Sugito, S. Mitsuda, H. Yoshizawa, N. Hosoi and T. Shin-jo, *J. Phys. Soc. Jpn.* **62**, 4474 (1993) .

要 旨

長周期スピン構造中において部分的無秩序状態にあるスピンの自由度を熱的解析により研究した結果を紹介した。 PrCo_2Si_2 における波数ベクトルを $\mathbf{k}(0, 0, k)$ とするとき, $k=13/14$ および $k=7/9$ に対応する整合相中に、1ヶあたり $k_B \ln 2$ のエントロピーをもつ常磁性的イオンが規則的に配位していることが、零磁場下の熱容量測定から明らかになった。二次元三角格子反強磁性体である CuFeO_3 の整合相 $(\sqrt{7}, \sqrt{7}, 2)$ においても同様に部分的無秩序状態のスピが存在していることが確認された。