ガラスの磁性

京都大学大学院 工学研究科

田中 勝久

Magnetism of glass

Katsuhisa Tanaka

Graduate School of Engineering, Kyoto University

はじめに一非晶質固体の磁性とランダ ム磁性体

非晶質固体の磁性は、原子が無秩序に配列し た固体において強磁性のような長距離的磁気秩 序が存在しうるかといった本質的な興味に端を 発して、古くから研究対象とされてきた。たと えば 1967 年には Fe-C-P 系非晶質合金の強磁 性に関する報告がある¹⁾。その後さまざまな系 で強磁性を示す非晶質合金が見つかり、軟磁性 体としての応用に結びついた。このころ発見さ れたもう一つのランダム磁性体にスピングラス がある。スピングラスは1972年にCannellaと Mydosh が AuFe 合金(非磁性の Au に磁性元 素の Fe を少量添加した合金)を対象に低温で の磁気転移を見いだしたことが端緒となって研 究が始まり²⁾, ランダム磁性体の雛型として数 多くの興味を引きながら理論・実験両面からの 考察が進められ、現在もなおエポックメーキン グな話題を提供している。この間に,酸化物, カルコゲン化物、ハロゲン化物においてもスピ ングラス相が見いだされており、従来の強磁性 体や反強磁性体などとは本質的に異なるこの奇

〒615-8510 京都市西京区京都大学桂 TEL 075-383-2801 FAX 075-383-2420 E-mail:tanaka@dipole7.kuic.kyoto-u.ac.jp 妙な磁性体への物質科学の観点からの興味は尽 きていない。また、スピングラスの理論的モデ ルは脳の連想記憶の機構との類似性が指摘さ れ、大きな反響を呼んだ³³。この分野はその後 着実に進歩し、ニューラルネットワークの一つ として情報工学の領域で大きな成功を収めてい る⁴。

一方,酸化物やフッ化物のガラスの磁性に関 する研究も同じころに開始された⁵⁰。多くの系 の磁気転移はスピングラスあるいは超常磁性 (次項を参照)で説明されてきたが,磁気転移 のダイナミクスや転移温度以下でのスピンの秩 序構造について詳細に調べられたのは比較的最 近である。本稿では,酸化物ガラスを中心にイ オン結合性ガラスの磁性について解説する。

2. 磁気モーメントの配列と巨視的な磁性

固体の磁性を担うのは電子のスピンと軌道角 運動量に起因する磁気モーメントであり,その 配列の違いにより多様な磁性が現れる。巨視的 な磁性の典型的なものは,反磁性,常磁性,強 磁性,反強磁性,フェリ磁性などであり,フェ ライトのような実用化されている酸化物磁性体 はほとんどがフェリ磁性体である。強磁性など における磁気モーメントの配列を模式的に描く と図1のようになる。スピングラスでは磁気 モーメントの向きが無秩序に凍結している。た NEW GLASS Vol. 24 No. 3 2009



とえば先に述べた AuFe 合金の場合,磁気モー メントを持つ Fe の濃度は低いので空間的な分 布はランダムである。また、伝導電子のスピン が局在化した磁気モーメントと相互作用し,磁 気的相互作用の符号が磁気モーメント間の距離 に依存して周期的に変わるので(このような磁 気的相互作用は Ruderman-Kittel-糟谷-芳田相 互作用とよばれる),磁気モーメントを平行に (強磁性的に) そろえる力と反平行に(反強磁 性的に) そろえる力が競合する。このため、局 在化した磁気モーメントは隣接する磁気モーメ ントに対して平行であっても反平行であっても 安定にならない。このような状況を磁気的フラ ストレーションという。図2に示すように正三 角形の頂点に磁気モーメントが存在し、隣接す る磁気モーメント間に反強磁性的な相互作用が 働く場合などが典型的なフラストレーション系 である。このような例はスピネル型フェライト の ZnFe₂O₄ などで見られる。磁気モーメント の配列のランダムさに加えてフラストレーショ ンが存在する系ではスピングラス状態が観察さ れる。

ー見するとスピングラスとよく似た挙動を示 す磁性に超常磁性がある。これは強磁性体やフ ェリ磁性体の超微粒子に見られる磁性で,粒子 内では磁気モーメントが強磁性などの秩序構造 を形成しているが,粒子が小さく磁気異方性エ ネルギーが低いため磁化の方向が定まらず,熱 エネルギーによる活性化で磁化の向きが時間と ともにランダムに変化している状態である(図 3)。よって,磁化の向きに関する緩和過程はア



ストレーション。



図3 強磁性やフェリ磁性の超微粒子が示す超常磁性。

レニウス型の関数で記述されることになる。

3. ガラスにおける磁気的相互作用

強磁性体や反強磁性体の常磁性状態の磁化率 は,分子場近似のもとで次のように表わされ る⁶。

$$\chi = \frac{NM_{\rm B}^2 \mu_{\rm B}^2}{3 k_{\rm B} (T - \theta_{\rm W})} \tag{1}$$

ここで, χ は磁化率,T は温度, θ w はワイス 温度,N は単位体積当たりの磁気モーメント の数, $M_{\rm B}$ は有効ボーア磁子数, $\mu_{\rm B}$ はボーア磁 子, κ_{B} はボルツマン定数である。ガラスにおいても十分高温ではこのキュリー-ワイス則が成り立つ。この理論に基づいて実験データを解析して得られる情報は、磁気モーメントの大きさならびに磁性イオン間の相互作用の種類と大きさである。後者はワイス温度に反映され、これは χ^{-1} とTの関係を表す直線と温度軸との切片として見積もられる。ワイス温度の正負に応じて隣接する磁気モーメント間の相互作用がそれぞれ強磁性的、反強磁性的となる。スピングラスのような強磁性と反強磁性が競合する系ではワイス温度がゼロに近いことが多い。

具体的な例として、図4にFe₂O₃-TeO₂系ガ ラス (図中のxは Fe₂O₃の割合であり, mol% で表現)の直流磁場下での磁化率の温度依存性 を示す⁷⁾。図中のZFCとFCは零磁場冷却(zerofield cooling) と磁場冷却 (field cooling) を表 している。零磁場冷却では磁性体に磁場を加え ずに低温(転移温度以下)まで冷やし、低温で 磁場を印加したのち温度を上げ、昇温過程で磁 化率を測定する。磁場冷却では高温(転移温度 以上) で磁場を加え、温度を下げながら磁化率 測定を行う。図4からわかるようにZFCでは 低温からの温度の上昇にともない磁化率は増加 し、ある温度 $T_{\rm f}$ (x=20 mol%であれば、8.9 K) で最大となったあと減少する。一方, FC ではT-以上において磁化率はZFCの磁化率と 一致するものの、低温側では ZFC と異なった 挙動を示し,磁化率は温度にほとんど依存しな い(温度の低下とともにわずかに増加する)。 この挙動は AuFe 合金など典型的なスピングラ スの磁化率の温度依存性に非常によく似てい る。Trでは何らかの磁気転移が起こっている。 以降,この温度をスピン凍結温度とよぶ。一 方. 高温領域の常磁性状態をキュリー-ワイス 則で解析すると図5のようになり、この系のガ ラスのワイス温度は負であり、Fe³⁺間には反強 磁性的な力が働くことがわかる。たとえばx= 20 mol%のガラスでは θ_{w} = -142 K である。 酸化物およびフッ化物ガラスのワイス温度はこ



図4 Fe₂O₃-TeO₂系ガラスの直流磁場下での磁化率の温度依存性。x は Fe₂O₃の割合であり, mol %で表されている。また, ZFC は零磁場冷却, FC は磁場冷却を意味する。



図5 Fe₂O₃-TeO₂系ガラスの磁化率の逆数の温度依 存性。直線はキュリー-ワイス則を表す。直線 と温度軸との切片がワイス温度θwである。

のように負になる場合がほとんどである。

これに対して,酸化物では Eu^{2+} を含んだケ イ酸塩ガラス⁸⁰,フッ化物では非晶質 FeF_2 (Fe^{2+} のみを含む)⁹⁰など,ワイス温度が正にな るガラスも報告されている。前者は全カチオン の 27 mol%が Eu^{2+} であり, $\theta_w = +1$ K となる が、磁気転移は少なくとも 1.5 K 以上では観察 されない。後者は気相合成された非晶質で、磁 化の逆数の温度依存性はキュリー-ワイスの法 則に従い、ワイス温度(強磁性的であるのでキ ュリー温度に等しい)は 21 K と正になる。こ の非晶質 FeF₂ は同時に超常磁性的な挙動も示 し、スピン凍結温度は 15±2 K である。つま り、長距離的な強磁性秩序は観察されていな い。結晶の FeF₂ は反強磁性体であり、ネール 温度が 78 K である。これを非晶質化すると Fe²⁺間の相互作用が強磁性的になるという事実 は興味深い。

4. 磁気転移近傍でのスピンダイナミクス

スピングラスではスピンの運動を見る時間的 スケールに応じて磁気転移温度が変化する。超 常磁性でも同様の挙動が観察されるが、磁気転 移を記述するパラメーターの値が異なり、両者 は明確に区別できる。酸化物ガラスやフッ化物 ガラスに対しても交流磁化率やメスバウアース ペクトルの温度依存性から見積もられる磁気転 移温度の周波数依存性が調べられ、解析がなさ れてきた¹⁰⁾⁻¹²⁾。図6は20Fe₂O₃・80TeO₂ガラス に対して ZFC で測られた交流磁化率の実部と 温度との関係である。交流磁場の周波数は0.1 Hz(最上部の曲線)から1000 Hz(最下部の曲 線)まで変化させた。磁化率の最大を与える温 度をスピン凍結温度とすると、これは交流磁場 の周波数に依存し、周波数が高くなるほど高い 温度でスピン凍結が起こっている。交流磁場の 変化が速い状況ではスピンの動きがそれに追随 できなくなり、高温でスピンのランダムな凍結 が起こっているように見えるためである。ま た、周波数の逆数はスピン凍結の緩和時間とみ なせるので,温度が低下するほど緩和時間が長 くなり、ある臨界温度で発散すると考えること もできる。この現象を critical slowing down という。このとき、周波数に依存するスピン凍 結温度 T_f(f)と緩和時間 τ との関係は、臨界温 度を T_cとして



図6 20 Fe₂O₃・80 TeO₂ ガラスの交流磁化率(実 部)の温度依存性。交流磁場の周波数は上から 順に、0.1,0.3,1,3,10,30,100,300,1000 Hz である。挿入図は、スピン凍結温度と緩和 時間の関係であり、破線の直線は式(2)を表す。

$$\tau = \left(\frac{\tau_0 T_{\rm f}(f) - T_{\rm c}}{T_{\rm c}}\right)^{-\omega} \tag{2}$$

で与えられ,緩和時間は温度のべき乗で変化す る。20 Fe₂O₃・80 TeO₂ ガラスのデータを式(2)で 解析した結果が図 6 の挿入図である。臨界指数 $z\nu$ は図中の直線の傾きとして得られ, $z\nu$ = 10,また, T_c =8.8 K, τ_0 =10⁻¹³sである。 $z\nu$ = 10と τ_0 =10⁻¹³sは典型的なスピングラスで報告 されている値に一致しており,特に τ_0 =10⁻¹³s は個々のイオン(原子)に付随した磁気モーメ ントの向きが変わる(これをスピンフリップと いう)時間に等しい^{13),14)}。もし超常磁性であれ ば超微粒子間に磁気的相互作用が存在するとし ても磁化の反転の緩和時間は τ_0 ~10⁶sの程度 となり,スピングラスとは明確に異なる^{14),15}。

5. 非線形磁化率

一般に磁化と磁場の関係は線形として扱うこ とができて、その比例定数が磁化率となるが、 スピングラスでは非線形項に特徴的な振舞いが 見られる^{16),17)}。温度*T*および磁場*H*の関数と しての磁化*M*(*T*,*H*)を*T*>*T*_fの温度範囲におい て*H*で展開すると

 $M(T,H) = \chi_0(T) H - \chi_2(T) H^3 + \chi_4(T) H^5 - \dots (3)$

となる。 $H \rightarrow 0$ の極限では $M(T, H) = \chi_0(T)H$ となって、 $\chi_0(T)$ は線形の磁化率を表す。これ に対して非線形磁化率は、

 $\chi_{\rm NL}(T,H) = M(T,H)/H - \chi_0(T) = -\chi_2(T)H^2 + \chi_4(T)H^4 - \dots \qquad (4)$

のように表現される。スピングラスでは χ₂が スピン凍結温度で発散する。この効果は PbMnFeF₇ガラスで検出されており、スピン 凍結温度における交流磁化率のカスプ状の変化 が直流磁場の印加で鈍ることから、 χ2の発散 が間接的に示唆されている¹⁸⁾。また、MnO-Al₂O₃ -SiO₂などの酸化物ガラスでは、さまざまな磁 場下での磁化の温度依存性を式(4)を考慮して解 析した結果が報告されている¹⁹⁾。図7は鉄リン 酸塩ガラス(組成はFeとPのモル比が45:55 で, Fe³⁺と Fe²⁺が混在する)の非線形磁化率 を解析した例である。挿入図は、さまざまな磁 場下での $\chi_{NL}(T,H)$ の温度依存性であり、 $\chi_0(T)$ を 20 Oe での直流磁化率として非線形磁化率を 見積もっている。 $\chi_{\text{NL}}(T,H)$ は磁気転移温度の 高温側で

$$\chi_{\rm NL} = -t^{\beta} \Phi \left(\frac{H^2}{-t^{\beta+\gamma}} \right) \tag{5}$$

の形で表すことができる 20)。つまり, XnL は $H^2/t^{\beta+\gamma}$ の関数である。ここで、 $t = (T-T_c)/T_c$ は換算温度で、 $B \ge \gamma$ は臨界指数である。図7 はT>T,の実験データを式(5)に準じて両対数プ ロットしたもので、さまざまな磁場と温度での 測定にもかかわらず、すべてのデータは非常に 広い範囲で(縦軸は3桁,横軸は7桁の変化) 一つの universal な曲線に乗っていることがわ かる。ここで式(5)に含まれるパラメーターの値 は $T_c = 7.8 \text{ K}, \beta = 0.9, \gamma = 3.6 \text{ としている}_{\circ}$ 臨界指数はスピングラスで報告されている値と よい一致を示している^{19),21),22)}。また、 $T_{\rm f}$ より十 分に高い温度(図7の左下の領域)で曲線の傾 きは1となり、温度がT_fに近づくと(右上の 領域), 傾きは漸近的に β/(β+γ)の値をとる ようになる^{19),21),22)}。このこともスピングラスの 特徴を示している。



図7 鉄リン酸塩ガラス(組成は Fe と P のモル比が 45:55 で、Fe³⁺と Fe²⁺が混在する)の非線形 磁化率の式(5)による解析。実線と点線は $T \rightarrow T_{\rm f}$ および $T \rightarrow \infty$ の極限を表し、直線の傾きはそれ ぞれ、 $\beta/(\gamma + \beta)$ および 1 になる。挿入図は、 解析に用いたさまざまな磁場下での非線形磁化 率の温度依存性。

6. 低温での磁気秩序構造

最近,スピングラスのダイナミクスに関連し て開拓されているエージング・メモリー効果の 実験23)が酸化物ガラスにも適用されている。前 出の 20 Fe₂O₃·80 TeO₂ ガラスを再び例に挙げ よう"。ここでは磁気転移温度以下での磁気秩 序相の性質を考察することになる。まず、ガラ ス試料を高温(室温)から零磁場の条件で冷却 する。その際,スピン凍結温度(臨界温度)T。 以下の適当な温度T。において数時間のスケー ルで試料を保持する。この過程をエージングと よぶ。エージングの終了後,再び温度を下げ, 十分低温になった時点で外部磁場を印加し、温 度を上げながら磁化率 $\chi(T)$ を測定する。図8 に示した 20 Fe₂O₃・80 TeO₂ ガラスの場合, T_e =8.8Kであり、T_aは7,6,および5Kに設定 している。降温と昇温の速さは 0.2 K/min で, 各T_wでのエージングの時間は3hである。ま た,昇温過程で印加している磁場の大きさは 50 Oe である。図 8 には通常の零磁場冷却で



図8 20 Fe₂O₃·80 TeO₂ ガラスのエージング・メモ リー効果。 T_s はエージングを行った温度。 $\chi(T)$ はエージング過程を含む零磁場冷却で得られる 磁化率で、 $\chi_{ref}(T)$ は通常の零磁場冷却の磁化 率。図の上部は $\chi(T) - \chi_{ref}(T)$ の温度依存性。

得られる磁化率 $\chi_{ref}(T)$ も示されている。エー ジングを行った場合の磁化率と通常の零磁場冷 却での磁化率を比較すると,エージングを行っ た温度 T_s の近傍において $\chi(T)$ が $\chi_{ref}(T)$ より小 さくなっている。それ以外の温度領域では $\chi(T)$ と $\chi_{ref}(T)$ が一致している。このことは図 8 の 上部に示した $\chi(T)$ と $\chi_{ref}(T)$ の差の温度依存性 を見ればより明確であり, $\chi(T)$ と $\chi_{ref}(T)$ の不 一致が dip となって現われている。ちなみにス ピン凍結温度以上の温度 (たとえば, T_s =10 K) で同様のエージングを行っても $\chi(T)$ と $\chi_{ref}(T)$ に差は見られず dip は観察されない。

以上の現象は次のように説明される。スピン 凍結温度以下では、各温度における準安定なス ピン配列(これはランダムである)が複数存在 しており、一つの温度 T_sでガラスを保持する と、スピンの配列はより安定な構造に向かって きわめてゆっくりと緩和する。いったん緩和が 起こるとガラスはその状態を記憶しており、温 度を下げたあと速やかにこの温度(T_s)に戻し ても緩和したあとの状態に対応したスピン配列 となる。これをエージング・メモリー効果とい う。また, $\chi(T) \ge \chi_{ref}(T)$ の不一致は T_s の近傍 のみで見られ,エージングによって変化した T_s での磁気構造は,低温側も高温側も他の温 度領域でのスピン配列には影響しない。換言す れば,安定な磁気構造は温度によって異なり, それらは互いに独立しており,各温度で安定状 態に達するためには長時間を要する。これらは スピングラスに特徴的な現象で,強磁性体や単 純な超常磁性体などでは観察されない²³⁾⁻²⁷⁾。図 8 の実験結果は,20 Fe₂O₃·80 TeO₂ ガラスの低 温での磁気秩序相がスピングラスであることを 明確に示している。

図8に見られるような $\chi(T) - \chi_{ref}(T)$ のdip は狭く深い場合と広く浅い場合とがある。前者 はスピングラス、後者はクラスタースピングラ スにおいて観察される。クラスタースピングラ スとは、個々の原子(イオン)の磁気モーメン トではなく、磁気モーメントの集合状態である クラスターが互いに相互作用しながらランダム に凍結した状態である。筆者らが調べた限り, Fe₂O₃-TeO₂系ガラス以外にFe₂O₃-Bi₂O₃-B₂O₃ 系^{28), 29)}と FeO-Fe₂O₃-P₂O₅系のバルクガラス, Fe₂O₃-Gd₂O₃系, Fe₂O₃-La₂O₃系の非晶質薄膜³⁰⁾ でもエージング・メモリー効果が観察されてい る。したがって、これらの酸化物ガラスや非晶 質酸化物の低温での磁気秩序構造はスピングラ スあるいはクラスタースピングラスとしてとら えることができる。

7. 磁気的フラストレーション

スピングラス相が現れる条件は磁気モーメン トのランダムな配列とフラストレーションであ る。ここでは後者について磁性イオンの化学構 造と関連させながら簡単にふれる。先に取り上 げたようにワイス温度の絶対値は隣接する磁性 イオン間の相互作用の大きさを反映する。すな わち,局所的な磁気的相互作用に対応してお り,ワイス温度の絶対値が大きければ磁気転移 温度も高くなるはずである。実際に強磁性体で はワイス温度はキュリー温度そのものである。

したがって、ワイス温度の絶対値が大きいにも かかわらずスピン凍結温度が低ければ、これは 磁気転移温度を低くしようとする力が働いてい ることになり、スピングラスではそれがフラス トレーションであると見なすことができる。よ って、 $|\theta_w|/T_f$ というパラメーターがフラスト レーションを見積もる指標となる。Fe₂O₃-TeO₂ 系と FeO-Fe₂O₃-P₂O₅ 系ガラスに対して $\theta_{\rm w}$ T_{f} の値を表1にまとめた。Fe₂O₃-TeO₂系と FeO-Fe₂O₃-P₂O₅系を比較するとフラストレー ションは前者の方が大きい。これがガラス構造 とどのように関係するかは現時点では不明であ る。また、FeO-Fe₂O₃-P₂O₅系ではFe³⁺の割合 が増えるほどフラストレーションも大きくなっ ている。Fe³⁺は3d⁵の電子配置でS状態であ るが、Fe²⁺は軌道角運動量が生き残り、磁気異 方性エネルギーが大きい。よって、Fe²⁺では磁 気モーメントの向きの自由度が制限されてお り、Fe²⁺の割合が増えるほどフラストレーショ ンが起こりにくくなる。

8. おわりに

本稿では酸化物ガラスのスピングラス転移の 説明に終始したが、ガラスの磁気的性質に関す るこれまでの論文を読む限り、ほとんどの酸化 物およびフッ化物ガラスの磁性はスピングラス あるいはクラスタースピングラスの範疇に含ま れる。その他の磁性、たとえば強磁性や反強磁 性の秩序が酸化物やフッ化物のガラスで可能か 否かは今後の研究を待たなければならないが、 強磁性転移を示す非晶質酸化物の存在について は、筆者は肯定的にとらえている。

参考文献

- 1) P. Duwez and S. C. H. Lin, J. Appl. Phys. 38, 4096 (1967).
- 2) V. Cannella and J. A. Mydosh, *Phys.Rev.B* 6, 4220 (1972).
- 3) J. J. Hopfield, Proc. Natl. Acad. Sci. USA 79, 2554 (1982).
- 4) 西森秀稔,スピングラス理論と情報統計力学,岩波 書店(2003).

Glass composition (mol%)	[Fe ³⁺]/[Fe _{total}]	$T_{\rm f}({ m K})$	$\theta_{W}(K)$	$ heta_{ m W}/T_{ m f}$
$10Fe_2O_3 \cdot 90TeO_2$	1.00	3.5	-57	16.3
$15Fe_2O_3$ · $85TeO_2$	1.00	7.3	-111	15.2
$20Fe_2O_3 \cdot 80TeO_2$	1.00	8.9	-142	16.0
$33Fe_2O_{3-\delta}$ · $67P_2O_5$	0.84	4.3	-34.8	8.1
	0.63	4.5	-29.6	6.6
	0.39	4.3	-21.9	5.1
$37Fe_2O_{3-\delta}$ • $63P_2O_5$	0.83	5.6	-45.9	8.2
	0.60	5.2	-33.4	6.4
	0.39	4.8	-25.4	5.3
$40Fe_2O_{3-\delta}$ • $60P_2O_5$	0.83	6.2	-54.3	8.8
	0.57	6.1	-37.7	6.2
	0.38	5.5	-27.2	5.0
$45Fe_2O_{3-\delta}$ • $55P_2O_5$	0.80	7.8	-71.9	9.2
	0.54	7.6	-51.9	6.8
	0.34	6.9	-36.0	5.2

表1	Fe ₂ O ₃ -TeO ₂ 系および FeO-Fe ₂ O ₃ -P ₂ O ₅ 系ガラスのスピン凍結温度 T _i ,	ワイス温
	度 $\theta_{\rm W}$,フラストレーションの指標 $ \theta_{\rm W} /T_{\rm f}$ と、全鉄イオンに占めるFe	3+の割合。

- 5) R. A. Verhelst, R. W. Kline, A. M. de Graaf, and H. O. Hooper, *Phys.Rev.B* 11, 4427 (1975).
- 6)近角聴信,強磁性体の物理 上・下,裳華房(1983, 1984).
- 7) H. Akamatsu, K. Tanaka, K. Fujita, and S. Murai, *Phys.Rev.B* 74, 012411 (2006).
- 8) J. Schoenes, E. Kaldis, W. Thoni, and P. Wachter, *Phys. Stat. sol.* (a) 51, 173 (1979).
- 9) F.J.Litterst, J. Phys. (Paris) 36, L-197 (1975).
- 10) P. Beauvillain, C. Dupas, J. P. Renard, and P. Veillet, *Phys. Rev. B* 29, 4086 (1984).
- J. P. Sanchez, J. M. Friedt, R. Horne, and A. J. Van Duyneveldt, J. Phys. C 17, 127 (1984).
- 12) J. P. Sanchez and J. M. Friedt, J. Physique 43, 1707 (1982).
- 13) P, Nordblad, J. Phys, : Condens. Matter. 16, S 715 (2004).
- 14) C. Djurberg, P. Svedlindh, P. Nordblad, M. F. Hansen, F. Bodker, and S. Morup, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 5154 (1997).
- 15) M. H. Hansen, P. E. Jonsson, P. Nordblad, and P. Svedlindh, J. Phys., Condens. Matter. 14, 4901 (2002).
- 16) ランダム系の物理学,日本物理学会編,培風館 (1981).
- 17) S. Chikazawa, T. Saito, T. Sato, and Y. Miyako, J. Phys. Soc. Jpn. 47, 335 (1979).

- 18) J. P. Renard, J. P. Miranday, and F. Varret, Solid State Commun. 35, 41 (1980).
- 19) P. Beauvillain, C. Chappert, J. P. Renard, and J. Seiden, *J. Magn. Magn. Mater.* 54–57, 127 (1986).
- 20) M. Suzuki, Prog. Theor. Phys. 58, 1151 (1977).
- 21) G. F. Goya and V. Sagredo, *Phys. Rev. B* 64, 235208 (2001).
- 22) A. Mauger, J. Ferre, and P. Beauvillain, *Phys. Rev.* B 40, 862 (1989).
- 23) R. Mathieu, P. Jonsson, D. N. H. Nam, and P. Nordblad, *Phys. Rev. B* 63, 92401 (2001).
- 24) M. Sasaki, P. E. Jonsson, H. Takayama, and H. Mamiya, *Phys. Rev. B* 71, 104405 (2005).
- 25) C. R. Sankar and P. A. Joy, *Phys. Rev. B* 72, 132407 (2005).
- 26) P. E. Jonsson, R. Mathieu, P. Nordblad, H. Yoshino, H. Aruga Katori, and A. Ito, *Phys. Rev. B* 70, 174402 (2004).
- 27) S. Miyashita and E. Vincent, Eur. Phys. J. B 22, 203 (2001).
- 28) H. Akamatsu, K. Tanaka, K. Fujita, and S. Murai, *J. Magn. Magn. Mater.* 310, 1506 (2007).
- 29) H. Akamatsu, K. Tanaka, K. Fujita, and S. Murai, J. Phys. : Condens. Matter 20, 235216 (2008).
- 30) H. Akamatsu, S. Murai, K. Fujita, and K. Tanaka, *Adv. Mater. Res.* **39–40**, 207 (2008).