

Title	C6Euと4スピン相互作用
Author(s)	榊原, 俊郎; 伊達, 宗行
Citation	大阪大学低温センターだより. 39 p.13-p.15
Issue Date	1982-07
oaire:version	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/12575
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

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

Osaka University

C₆Euと4スピン相互作用

理学部 榎原俊郎, 伊達宗行 (豊中 4155)

C₆Euは最近各方面で注目されているグラファイト層間化合物の中でも、裸の磁性イオンをインターカレートすることに初めて成功した非常にユニークな物質である。最近、我々はC₆Euの強磁場化測定を行ない、その磁化過程を調べたところ、意外にも4体のスピン相互作用(4-スピン相互作用)がこの系に存在することが明らかになった。

普通、磁性体の磁気秩序を担うスピン相互作用は主として、2コのスピン S_1, S_2 のスカラー積

$$- 2 J S_1 \cdot S_2, \quad (J \text{ は定数}) \dots\dots\dots (1)$$

で表わされる。この式は本来、局在スピン間相互作用の第1近似であり、少なくとも原理的には高次の補正項として $(S_1 \cdot S_2)^2, (S_1 \cdot S_2)(S_2 \cdot S_3), (S_1 \cdot S_2)(S_3 \cdot S_4)$ 等それぞれスピンについて4次の2体, 3体, 4体の相互作用が存在しうる¹⁾が、現実にはこれら高次の項は小さく、今までに一部のMn化合物で $(S_1 \cdot S_2)^2$ 項の存在が指摘²⁾されている以外は、無視されて来た。ところが最近、固体³He³⁾やNiS₂⁴⁾等量子的ゆらぎの大きな系の磁性において、4体のスピン相互作用(4-スピン相互作用)が中心的役割を果していることが報告され、¹⁾わかに注目されている。ここに紹介するC₆Euでも、ごくわずかだが4スピン相互作用が存在し、それが磁化過程に見事にあらわれているのである。

C₆Euの結晶は図1(a)に示す様にグラファイトの各層間にインターカレートしたEuが、c面に三角格子を形成し、Euだけに注目すると図1(b)の様なhcp構造である。Euはグラファイトπ-バンドへ2個電子を供出して2価(Eu²⁺)となっており、この物質は面内の電気伝導度がc軸方向より2桁大きい、2次元的な伝導を示す金属と考えられる。因にC₆Euはグラファイトからは想像もつかない程、きれいな金色を帯びた結晶である。

定常磁場40kOeまでの測定から⁵⁾、この物質は40KにT_Nを持つeasy plane型反強磁性体であることがわかったが、磁化過程の全貌を見る為、阪大強磁場を用いて磁化測定を行なった。その結果得られたのが図2に点線に示す磁化曲線で、4.2Kでc面に磁場をかけた場合である。⁶⁾約220kOeで磁化

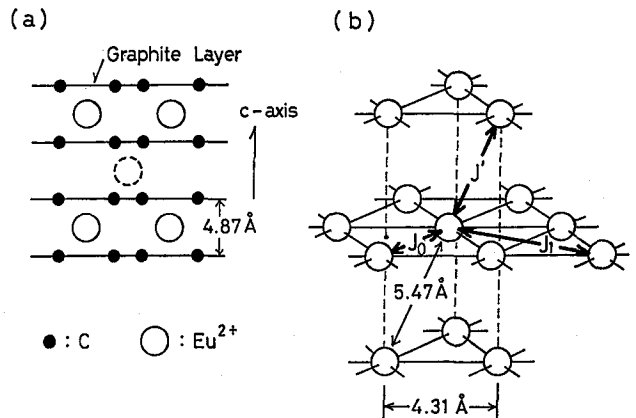


図1. C₆Euの結晶構造

は飽和しており、飽和磁化値はスピ
ン $\frac{1}{2}$ を持つ Eu^{2+} から予想される
 $7 \mu_B / \text{Eu}$ にほぼ等しい。ところが
図で磁場 H_{C1} と H_{C2} の間に飽和磁
化の約 $\frac{1}{3}$ の大きさのフラットな部
分（プラトーと呼ぶことにする）が
あるのが特徴である。

さて、この系は先にも述べた様に
2次元的金属であり、この場合も局
在した Eu スピン間には伝導電子を
媒介として(1)の型の相互作用（特に
RKKY相互作用と言う）が働く。

そこで問題は、この相互作用だけで磁化過程が説明できるかという点にある。結論からいうと、(1)のタイプの相互作用だけでは磁化過程に見られたプラトーを再現することはできない。理由は以下の通りで、まずc面内最近接スピンの相互作用（図(b)の J_0 反強磁性的）だけを考えた時の基底状態は図3(a)の三角配列 (Δ) で、その磁化過程は磁場に比例して直線的に増加して行く。これに対し $\frac{1}{3}$ 磁化を持つプラトーは、 $\text{CoCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ⁽⁷⁾ で有名なフェリ構造 (FI, 図3(b)) と考えられ、ゼロ磁場では Δ に較べ少しエネルギーの高い状態である。ところが、(1)の相互作用だけでは磁場をかけていっても、フェリ構造のエネルギー U_{FI} が、三角配列のエネルギー U_{Δ} よりも低くはならないのである。さらに (RKKY相互作用は一般に long range であるから) 遠くのスピンの相互作用 J_1, \dots, J', \dots をとり入れても、この事情は変わらないことが示される。これらは全て、 Δ と FI の自由エネルギーが同じ 3-sublattice model (図3の $M_1 \sim M_3$) で表わされることから来ており、sublattice 間の2次の反強磁性相互作用を考える限り、 $M_1 \sim M_3$ が互いに平行な FI 状態よりは互いに角度を持った Δ 状態の方が磁場中でも安定となる為にプラトーは現われないのである。もっとも、もしc面内の磁気異方性が存在すれば $\frac{1}{3}$ ステップの磁化があらわれることはありうるが、⁽⁷⁾ しかし今の場合 Eu^{2+} は S 状態にある “丸い” イオンである為、異方性で説明することも困難である。

ここまでの考察から、この系では(1)のタイプの相互作用以外に、 Δ に対して FI のエネルギーを下げる何らかの相互作用が存在し、その結果、 U_{Δ} と U_{FI} の交差が磁場中で実現していると考えることができる。その有力な可能性として4次の2体、および4体の相

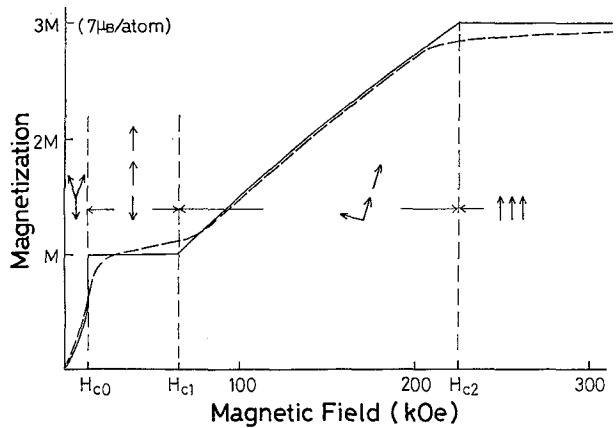


図2. GdEu の磁化過程

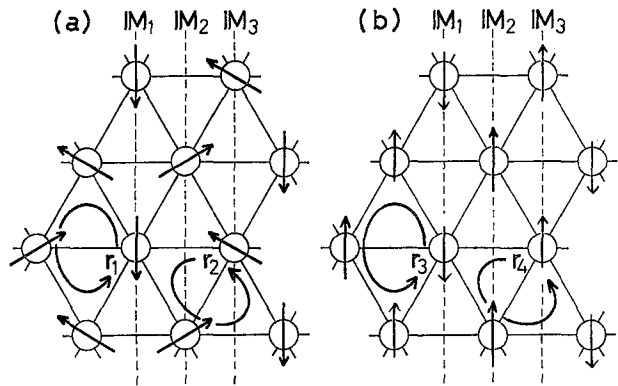


図3. 三角配列(a)とフェリ状態(b)のスピ構造

相互作用

$$-B (\mathcal{S}_1 \cdot \mathcal{S}_2)^2 \dots \dots \dots (2)$$

$$K [(\mathcal{S}_1 \cdot \mathcal{S}_2)(\mathcal{S}_3 \cdot \mathcal{S}_4) + (\mathcal{S}_1 \cdot \mathcal{S}_4)(\mathcal{S}_2 \cdot \mathcal{S}_3) - (\mathcal{S}_1 \cdot \mathcal{S}_3)(\mathcal{S}_2 \cdot \mathcal{S}_4)] \dots (3)$$

を検討して見よう。Bとしては最近接スピン間、Kについては図3に示す4種類の最近接路をとり、自由エネルギーへの寄与を調べてみると、 $B > 0$ 、 $K > 0$ のときたしかに Δ に対しFIを安定化させる様に働く。しかも、 $B/|J_1| = 0.004$ 、 $K/|J_0| = 0.009$ ($J_0/k_B = 0.5\text{K}$)という小さな値で実験結果をうまく説明可能であることがわかった。図2の実線はこれらの値を用いて得られた理論カーブで、実験の特徴を良く再現している。ここで4次の項B、Kが共に非常に小さいことは、この物質がRKKY系であることから当然であるが、スピンの $1/2$ と大きいために4次の項のエネルギーとしての寄与は10%近くにも達している点が重要で、その結果磁化プロセスを変えうるのである。さらに、実験では T_N よりかなり低い30K前後でプラトーが消えてしまう⁶⁾が、これは $\langle S^2 \rangle^4$ の項が温度とともに急激に減少するため4次の相互作用は T_N 付近では効いてこないからと考えられる。

以上のように、小さな4次の相互作用をとり入れる事によりこの物質の磁化過程がきわめて自然に理解できたが、この理由をもう1つ上げるとすれば、この素が基本的に三角格子反強磁性体であり、三角格子特有のフラストレーションの為に、 Δ スピン状態が2次の相互作用エネルギーをそれほど得ていないという事だろう。その結果、弱い高次の相互作用の効果が大きく現われたと言う事が出来よう。

参考文献

- 1) C.Hevring: *Magnetism* IIB.(Academsc Press, 1966) 2.
- 2) E.A.Harris and J.Owen: *Phys. Rev. Lett.* 11 (1963) 9.
- 3) M.Roger, J.M.Delrieu ad J.H.Hetherington: *Phys. Rev. Lett.* 45 (1980) 137.
- 4) A.Yoshimori and S.Inagaki: *J.Phys. Soc. Jpn.* 50 (1981)769.
K.Yosida and S.Inagaki: *J.Phys. Soc. Jpn.* 50 (1981)3268.
- 5) H.Suematsu, K.Ohmatsu and R.Yoshizaki: *Solid State Commun.* 38 (1981) 1103.
- 6) H.Suematsu, K.Ohmatsu, K.Sugiyama, T.Sakakibara and M.Date: *Solid State Commun.* 40 (1981) 241.
- 7) H.Kobayashi and T.Haseda: *J.Phys. Soc. Jpn.* 19 (1964) 765.