

福間寛, 国井暁, 糟谷忠雄

EuSeの特異なスピン構造と磁気相図の起源は未解決の問題である。この立場から、これ迄の研究結果を見ると、幾つかの問題点のある事に気付く。先づその問題点を指摘し、次に我々の行った実験結果を合わせ具体的に論じた後これらを土台とするハミルトニアンを用いて行いつつある計算結果の途中ではあるが報告したいと思う。

### § 1. 幾つかの問題点

- (i) 独特のスピン構造と複雑な磁気相図に関して、双極子相互作用や大きな磁歪が重要な役割を果たしていると言われたが、これらの点が明確でない。
- (ii) 第1表は G. Everett による強磁性共鳴から得た立方磁気異方性定数  $K_1, K_2$  の温度変化を、立木グループが解析した結果である。  $K_1, K_2$  共に EuO, EuS, EuSe でほぼ同程度の大きさであるにも拘らず EuSe でだけ双極子相互作用の寄与が特に  $K_2$  で 100% にも達しており、大きな謎である。

(第1表)  
Origin of Anisotropy Energy  
(after A. Kasuya and M. Tachiki)

	EuO		EuS		EuSe	
ORIGIN	$K_1$	$K_2$	$K_1$	$K_2$	$K_1$	$K_2$
Cryst.	98.3	94.0	93.9	91.9	62.5	0
Dipole	0.6	0.4	6.1	8.1	9.0	13.7
Pseudo-dipole	1.1	5.6	0	0	28.5	86.3

(all in %)

- (iii) McGuire による磁化測定の様子を

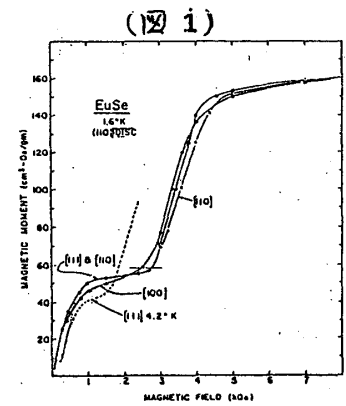
(図1)に示すが、NNS 状態での異方

性はスピンは大体111面近くに揃っているという中性子散乱の結果との明確な一致を手していない。又、NNS からフェロへの転移磁場の異方性は期待されるより小さい。更に、フェロ状態での  $M$  の伸びは小さな異方性エネルギーであるにも拘らず非常に緩慢である。

### § 2. 磁歪及び双極子相互作用

(図2)に Guessen による自発磁歪の温度変化と我々の得たフェロ状態の磁歪の温度変化を示す。これらとは別に Leng の格子定数測定は、ネール点より、はるか

に高温(約20K)で既に自発磁歪の起っている事を示している。その時の零点は Guissan の NSNS 状態で伸びきった辺りに一致すると思われる。他方 Schwab による圧力下での  $M$  及び  $\lambda$  の測定が  $\text{EuX}$  について行われ、 $J_1$  は圧力に鈍感であるが、 $J_2$  は鋭感である事を示している。



さて NSNS を零点としてフェロの縮み量と例えば NMR 周波数の相関を見ると磁歪の原因は殆ど exchange によるものと考えられ、上述の事から最近接原子間  $J_1$  によるものが dominant だと思われる。そうすると  $\{111\}$  面内では、いつも縮み、 $\{111\}$  面間は平行整列か反平行整列かに応じて縮み、又は伸びが起る。この時  $[100]$  方向での磁歪は

$$\text{NSNS} : \text{NNS} : \text{NNSS} : \text{NNN} = 0 : -\frac{2}{3} : -1 : -2$$

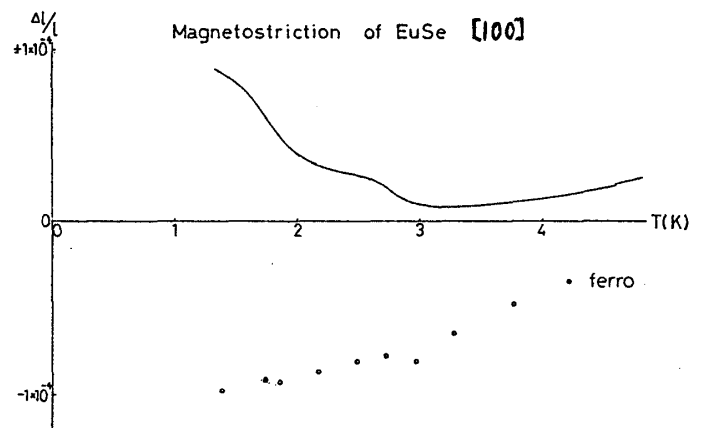
となり非常に良く実験を説明している。

(図2)

定量的な一致をする為には

$$\frac{\partial J_1}{\partial \lambda} = -4.9 \text{ K}$$

という値を得るが、これは  $\text{EuO}$ 、 $\text{EuS}$  よりも小さい。しかし磁気構造を実現する上で、大きな役割を担っている事が計算により明らかとなる。



次に双極子相互作用について述べるが、ここでは磁気的なものに限る。実現している磁気構造に於ける磁気双極子エネルギーは磁場に換算して、約4K G程度で、フェロを除いて、いずれの場合もスピンを  $\{111\}$  面内に張り付ける異方性エネルギーの原因となっている。この事は我々の磁化測定の結果と一致する。しかし、例えば NNSS と4枚ピッチの spiral では、このエネルギーは全く等しく、スピン構造の安定化の要因とはなり得ない。

### § 3. 磁気異方性エネルギー

Enzeli による強磁性共鳴 (それから得られる  $K_1, K_2$  を図 4 に示す) は外磁場約 8 KG で行われた。我々はより高磁場 (約 12 KG) で強磁性共鳴を行い  $K_1, K_2$  を測定し (図 3) のような結果を得た。両者を比較すると  $K_2$  の値、及び温度依存性に著しい差異が認められる。一方  $K_1$  は大きさ、振舞、共似通っている。この  $K_2$  の顕著な磁場依存性は、 $K_2$  の異常性をその起因に求めるより、フェロ領域とされて来た領域のスピン構造が単純なものではないと考える方が、次に述べる磁化の振舞とを合わせて合理的であるようだ。

(図 3)

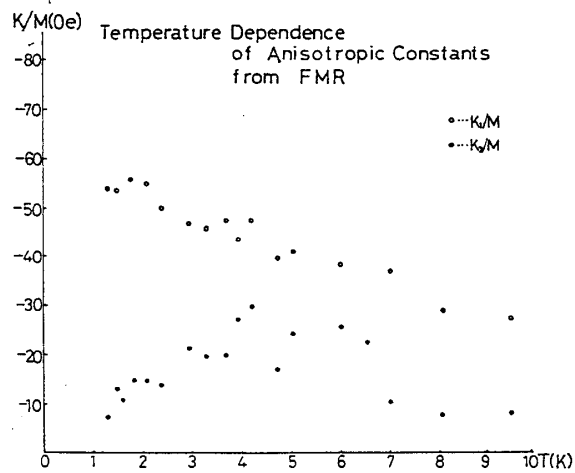
### § 4. 磁化

これまでになされた測定は、どれも詳細な情報を得る為の精密さに欠けている。そこで引抜き誘導法を用いた精密磁化測定を行った。

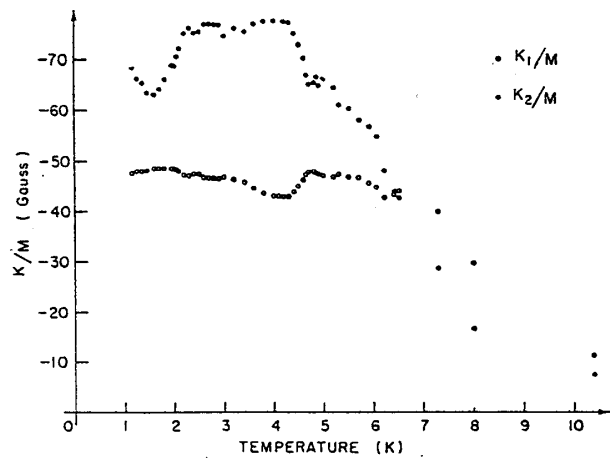
我々の測定精度について触れるておくと、測定値の精度は 0.1% であって、試料の球型からずれば実験結果から 2% 以内である事がわかっている。

4.2°K の  $M-H$  過程を (図 5) に示す。顕著な点は外磁場、約 3.8 KG でフェロになるが、この時の  $M$  は 85 KG 時の  $M$  の 65% に過ぎない。

(85 KG の  $M$  は  $7M_0$  より 0.7% 小さい) これを Mössbauer や NMR の結果と比較すると、それらでは 4.2°K の副格子磁化は 0°K への外挿値の 76% あるのに対して大巾な減少となっており、フェロ転移後のモーメントの緩慢な伸びと共に平



(図 4)



行に揃った純粋な強磁性状態ではなく、かなり cant した異なる相が実現している事を示している。1.4°K の M-H プロセス (図6) も同様である。McGuire による結果 (図1) の我々の結果と consistent である。

1.4°K の NNS 領域の M-H プロセスを (図7) に拡大してみる。そこでは次の3つの点が明らかである。

(i) NNS 状態が実現した部分の M の大きさを  $\langle 110 \rangle$ ,  $\langle 111 \rangle$ ,  $\langle 100 \rangle$  の3つの方向で比較してみると、良い精度でスピンの  $\{111\}$  面内に揃っている事が明らかになっており、これは従来の磁化測定では不明確であった。

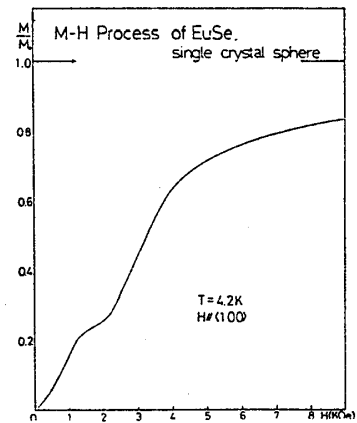
(ii)  $\langle 100 \rangle$  方向に磁場を加えた時の M の増加は著しく、フェロへの転移直前には  $\frac{7}{3}\mu_B$  よりも 10% も大きくなっていて、スピンの cant がかなり大きい事を示している。

(iii)  $\langle 110 \rangle$  の M は  $\frac{7}{3}\mu_B$  よりも、かなり縮んでいて 5~6% 小さい。この縮みは、温度の効果によるものとしては異常に大きく、この点を明らかにする為に、より低温の実験と理論的解析を準備中である。

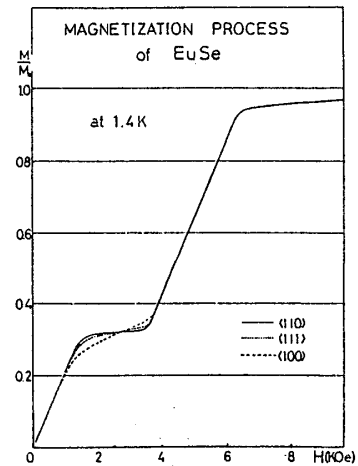
### § 5. 双2次交換相互作用による磁気相図の再現

最初に述べたように EuSe に起っている磁歪は通常の磁性体で見られるのと同程度で、到底1次相転移を引起す力にはなり得ない。1次相転移を起し、且つ、独特の平行又は反平行整列を実現させるのに高次の交換相互作用

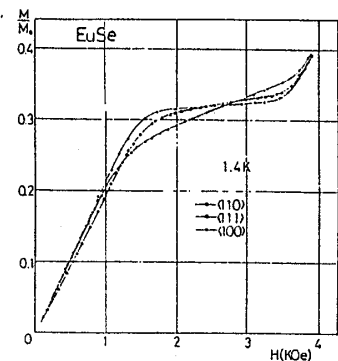
(図5)



(図6)



(図7)



が効いている事は確かである。

そこで我々は、次のようなハミルトニアンを用いて、各スピン構造の自由エネルギーを分子場近似により計算している。

$$\mathcal{H} = -\frac{1}{2} \sum_{i,j} J_{ij} S_i \cdot S_j - \frac{1}{2} \sum_{i,j,k} J_{ijk} (S_i \cdot S_j) S_k + \frac{1}{2} (g\mu_B)^2 \sum_{i,j} \left\{ \frac{S_i \cdot S_j}{r_{ij}^3} - \frac{3(S_i \cdot r_{ij})(S_j \cdot r_{ij})}{r_{ij}^5} \right\}$$

ここで1項は bilinear exchange 項で  $J_1 = J_{10} + \frac{\partial J_1}{\partial \ln r} \left( \frac{\Delta r}{r} \right)$ ,  $J_2$  まで取る

2項が biquadratic exchange の項で (四)8 で  $P_1 = \frac{J_1}{J_1}$ ,  $P_2 = \frac{J_2}{J_1}$  を意味する。

3項は magnetic dipole の項。

$J_1, J_2, j_1, j_2$  は  $T_N, \theta_p, M_{T_N}$  及び低温での  $M-H$  特性から決める。

計算結果を (四)8 に示す。縦軸は  $NNSS$  を 0 とした値を示している。幾つ

かのスパイラル構造についても計算したがこれは、はるかに (約 1°K 程度) 高いエネルギーを持つ問題にならない。NNN は (四)8 に示した3つより少し上側に位置し、 $EuSe$  で実現している4つのスピン構造は、エネルギー的に極めて接近している。このパラメータで既に  $NNSS$  と  $NSNS$  が温度によって入り替わり実現し得ることが明らかである。

1.4°K の  $M-H$  特性を実現するには  $j_2 (< 0)$  を取り入れる必要があるが、これは  $NSNS$  よりも  $NNS$  のエネルギーを降下させ、 $H=0$

で、 $NSNS, NNS, NNSS$  を交互に実現する可能性が強くなり、この辺りを考慮して更に計算を進めている。

## § 6. 結論

- (i) 我々のモデルで、これ迄の実験をかなり良く説明し得るが、強磁性領域のスピン構造を中心として幾つかの問題が残る。(ii)  $NNS$  で零点縮少が大きい可能性が強い。今後の課題である。

