

Title	三角格子ハイゼンベルグ反強磁性体VBr ₂ VCl ₂ のESR(強い相関をもつゆらぎの統計物理学, 科研費研究会報告)
Author(s)	山田, 勲
Citation	物性研究 (1983), 40(5): 10-13
Issue Date	1983-08-20
URL	http://hdl.handle.net/2433/91119
Right	
Type	Departmental Bulletin Paper
Textversion	publisher

三角格子ハイゼンベルグ反強磁性体 ∇Br_2 , ∇Cl_2 の ESR

千葉大・理 山田 勉

すぐ前の講演で、三角格子ハイゼンベルグ反強磁性体について、種々の問題点が指摘された。その中で取り上げられた ∇Br_2 , ∇Cl_2 について、ESR の実験を行なうため、その結果について報告する。なお、用いた単結晶試料は平川先生より支給されたものである。

まず、室温 ($T \gg T_N$) における共振磁場から得られる g -値を表 1 に示す。 ∇Br_2 , ∇Cl_2 とともに、 g 値の異方性は極めて小さい。しかもその値は 2.0 に近く、良いハイゼンベルグ性を示している。室温における吸収線は、単純な exchange narrowed line を示し、その線幅 ΔH_{pp} は、両者とも $70 \sim 80^\circ\text{C}$ で、外部磁場 $H \parallel C$ 軸の場合に、 $H \perp C$ 軸の場合に比べて、 $7 \sim 10^\circ$ 大きい。 ∇Br_2 について、温度 T 低下による $\Delta H_{pp} \sim T$ を図 1 に示す。 $H \parallel C$ の場合、 ΔH_{pp} は $T = 28^\circ\text{K}$ (T_N) で発散し、 $T < T_N$ では吸収線は観測できなくなる。一方 $H \perp C$ では、 $T \sim 28^\circ\text{K}$ で $\Delta H_{pp} \approx 2.5 \text{ kOe}$ のピークを示し、それ以下の温度で、 T 低下とともに、 ΔH_{pp} は減少していることがわかる。

	∇Br_2	∇Cl_2
$H \parallel C$	1.992	1.969
$H \perp C$	1.994	1.973

表 1. ∇Br_2 , ∇Cl_2 の g -値
外部磁場 H が C 軸に平行および垂直の場合についての値。

次に、24 GHz 帯での共振線の温度依存 ($H_0 \sim T$) を図 2 に示す。まず、 $T > T_N$ の領域で T が T_N に近づくにつれて、 $H \parallel C$, $H \perp C$ の場合ともに、 H_0 は低磁場側へ shift する。この現象は、 $\text{K}_2\text{MnF}_4^{(1)}$, $\text{TMMC}^{(2)}$ 等、通常の反強磁性体に見られる $H_0 \sim T$ (H の方向により、高磁場側、低磁場側へと、反対方向に shift する) と比べると全く異なり、むしろ、スピングラス ($\text{CuMn}^{(3)}$, $\text{Gd}_{0.37}\text{Al}_{0.63}$ 等) や、強磁性-反強磁性競合混晶系 (例えば $\text{K}_2\text{Cu}_x\text{Mn}_{1-x}\text{F}_4^{(5)*}$) 等に見られるように、 H の方向によらず低磁場側へ shift する現象とよく似ている。

図 2 に示すように、 $T < T_N$ での $H_0 \sim T$ について述べる。(なお $T = 1.3^\circ\text{K}$ での H_0 の角度変化は図 3 参照) 共振磁場 H_0 は、 1.3°K から温度 T と異とともに、急激に増加し、 $g = 2.0$ から予想される位置に近づく。

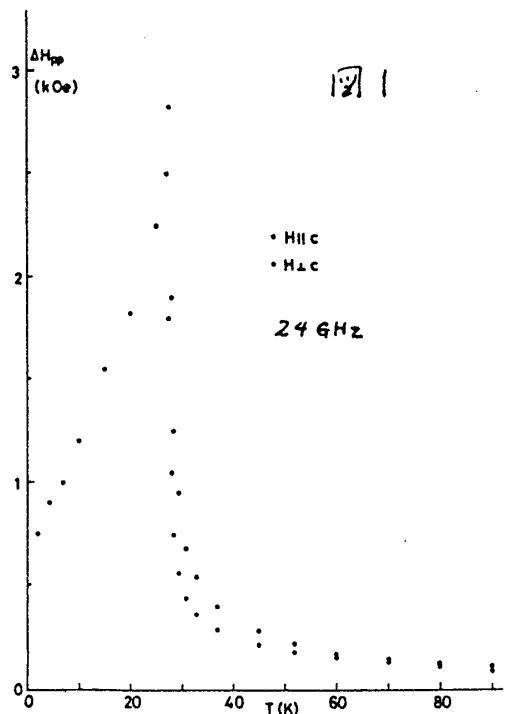


図 1. ∇Br_2 : 線幅の温度変化

* $\text{K}_2\text{Cu}_x\text{Mn}_{1-x}\text{F}_4$ では、ある x の領域で、 $J(\text{Cu-Cu}) > 0$, $J(\text{Cu-Mn}) < 0$, $J(\text{Mn-Mn}) < 0$ であり、平面正角格子内でフラストレーションを伴う。

その際の $\Delta H_{pp} \sim T$ は図1に示した通りである。

一方、9 GHz帯では $H_0 \sim T$ の状況は一変する。24 GHz帯の結果と同様に、9 GHz帯でも、 $T < T_N$ で $H \parallel C$ の場合、吸収線は観測される。H \perp C の場合、 $T = 1.3^\circ K$ で $H_0 \approx 1.5 kOe$ 近くに出た吸収線は、 $1.3^\circ K \sim 1.7^\circ K$ の間で、 T 上昇とともに急激に低磁場側へ shift する。(図4参照)。 $T = 1.7^\circ K$ では外部磁場 $H = 0$

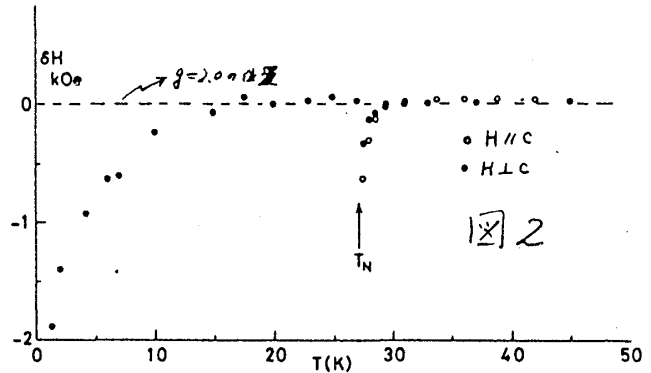


図2. ∇B_{Y_2} : 24 GHzにおける共振磁場 H_0 の shift. 図には $g=2.0$ の位置 ($g \approx 2.00$) からの shift が示している。

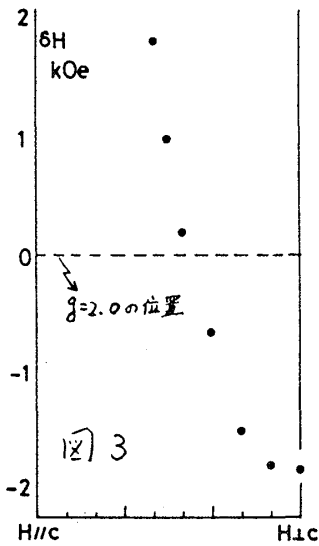
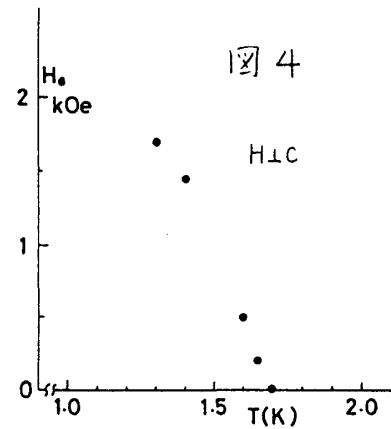


図3. ∇B_{Y_2} : $T = 1.3^\circ K$ での共振磁場 shift (24 GHz)

図4. ∇B_{Y_2} : 9 GHz での共振磁場 $H_0 \sim T$ ($T > 1.7^\circ K$ にあたり図5).



で共振がみられる。逆に、 $T > 1.7^\circ K$ では T 上昇とともに H_0 は高磁場側へ shift して行く (図5参照)。($T = 2^\circ K \sim 10^\circ K$ では吸収線の歪みが大きくて、共振点が明確ではないうえに図5には示していない。)

以上に述べた、 $T < T_N$ での $H_0 \sim T$ を通常の反強磁性共振理論に従って考えよう。

マイクロ波周波数 ω と 局外磁場 H_0 とは、主に $\sqrt{2H_E H_A}$ (H_E : 交換磁場, H_A : 異方性磁場) で決まる、いくつかの mode (high, low 等) による関係づけられる。(例えば一軸性の場合、 $\omega_E/\gamma = \sqrt{2H_E H_A} + H_0$, $\omega_L/\gamma = \sqrt{2H_E H_A} - H_0$)。今 $H = H_0$ で観測される吸収線が、どの様な mode に乗っているかを知るには H_0 の T 依存性を見ればよい。一般に $H_E H_A \propto M^2$ (M は磁化) で与えられるので、 $\sqrt{2H_E H_A}$ は T 上昇とともに低下する。従って、もし high freq.

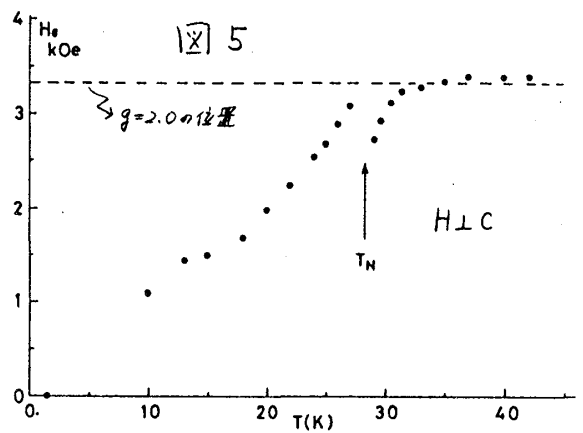


図5. ∇B_{Y_2} : 9 GHz での共振磁場 $H_0 \sim T$ ($T > 1.7^\circ K$, $T < 1.7^\circ K$ は図4)

modeと同等のmodeに乗る。つまり、 H_0 はT上昇とともに高磁場側へshiftする(図6の ω_1 参照)。一方とし、 H_0 がlow freq. modeに相対するmodeに乗る。つまり、 H_0 はT上昇とともに低磁場側へshiftする(図6の ω_2)。さらにTが上昇して $\omega_2 = \sqrt{2HEHA}$ になれば、たとえTでは、 $H_0=0$ で共振が生じ、それ以上のTでは、 H_0 が高磁場側へshiftしていく(modeの乗りかえがおきる)。

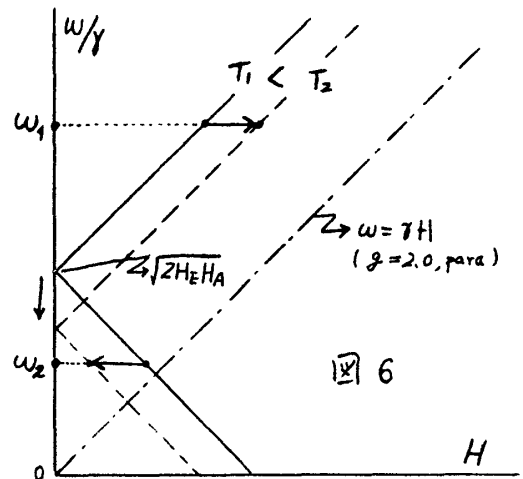


図6. 一軸性を例にした、modeの温度変化の説明($T_1 < T_2$)。

以上に述べた $\omega \sim H$ の関係を用いて、 ∇Br_2 において、 $T < T_N$ で観測された、 $H_0 \sim T$ について説明する。まず $\omega = 24 \text{ GHz}$ では、 $H_0 \sim T$ が示すように、high freq. modeに乗る。一方、 $\omega = 9 \text{ GHz}$ では、 $T = 1.3^\circ\text{K} \rightarrow 1.7^\circ\text{K}$ の上昇に対して H_0 は低磁場側へshiftするから、この温度領域ではlow freq. modeに乗る。図4からわかる通り、 $H_0=0$ の共振が $T = 1.7^\circ\text{K}$ でみられる。即ち、 $T = 1.7^\circ\text{K}$ では、 $\sqrt{2HEHA} = \omega/\gamma = 3270^\circ\text{e}$

($\omega = 9.15 \text{ GHz}$)を満足してゐるはずである。さらに $T > 1.7^\circ\text{K}$ では、T上昇とともに、 H_0 は高磁場側へshiftしていくから、 $\omega/\gamma > \sqrt{2HEHA}$ となり、共振点はhigh freq. modeに乗りかえてゐる。では、 24 GHz の $T < T_N$ でみられた $H_0 \sim T$ は何が原因に成るのだろうか。通常 $T \ll T_N$ では、 $HEHA \propto M^2$ の関係から、 $H_0 \sim T$ は $\sqrt{2HEHA}$ の温度変化を表わす。従って、 $HEHA \propto M^2$ から予想される $H_0 \sim T$ は図7に示すように、低温側でゆるやかな温度変化を示し、 $T \sim T_N$ で $M \sim T$ の急激な変化と反映し、大きな変化を示すはずである。事実、多くの反強磁性体では、このような $H_0 \sim T$ 関係がみられる。しかし、今の場合このような $H_0 \sim T$ を示していない(図2, $T < T_N$)。 ∇Br_2 の $H_0 \sim T$ ($T < T_N$)の原因として、核スピンのhyperfine相互作用を通して、電子スピンの異方性を考えることができる^(6,7)。即ち、 $T < T_N$ では、核スピンIには、電子スピンSから $A \langle S_z \rangle / g_N \mu_N$ の磁場が作用するが、核スピンはまだparaの状態 $\langle I_z \rangle \propto 1/4$ にあると考えられる。電子スピンは逆に、核スピンからの有効磁場 $A \langle I_z \rangle / g_e \mu_B \propto 1/4$ をうけることになる。電子スピンのマイクログ波で共振状態にあるとき $\langle I_z \rangle$ からの有効磁場は効かず、実質的に異方性磁場として作用する。(従って、静的な帯磁率などには、 AIS は異方性としては、はたらかない。)

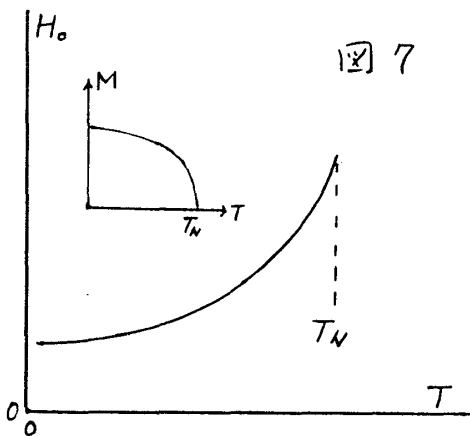


図7. 通常の $HEHA \propto M^2$ から予想される $H_0 \sim T$ ($T < T_N$)。

図2の $H_0 \sim T$ ($T < T_N$)を、 $H_0^2 \sim 1/T$ に直したものが図8である。明らかに低温領域では

$H_0^2 \propto 1/T$ の関係にあるとみなしてよいであろう。

そこで $(\omega/\gamma) = \sqrt{2HEHA + H_0^2}$ と仮定して、

$$H_E = \frac{2ZI\gamma S}{g\mu_B}, \quad |I| = 16^\circ K, \quad S = 3/2$$

を用い、 HA を見積ると $HA(T) = 5.4^\circ K/T$ になる。

先に述べた、 $T = 1.7^\circ K$ におけるゼロ磁場励起 $\sqrt{2HEHA} = \omega/\gamma = 3270^\circ e$ ($\omega = 9.15 \text{ GHz}$) から、 HA を算出してみよう。 H_E として、すぐ前に用いた値を使って、

$$HA(T = 1.7^\circ K) = 2.5^\circ e \text{ とはなり、これは } HA(T) = 5.4^\circ K/T$$

に $T = 1.7^\circ K$ として得られる値 $3.2^\circ e$ に近い。

では、 9 GHz 帯での $1.7^\circ K < T < T_N$ における共鳴磁場 $H_0 \sim T$ の原因は何れであるか。この温度範囲では、すでに high freq. mode に相当する mode に乗っかっていくはずであるが、その $H_0 \sim T$ は、 24 GHz 帯で見られた $H_0 \sim T$ ($T < T_N$; 図2) とは全く異なり、

い。これは今のところよく説明できない。しかし ∇Cl_2 と $\Delta H_{pp} \sim T$, $H_0 \sim T$ 等は、ここに示した ∇Br_2 とはほとんど同じ現象を示す。

以上、観測された結果を示し、部分的に定性的な説明を加える。しかし、すぐ前の議論で、平凡により示された、 ∇Br_2 において予想されるスピン構造と考えると、ここで述べたことに対し、種々の疑問が生じる。まず、中性の同折で得られた飽和磁化と、NMR によるそれとに大きな差があること、即ち、測定する時間帯により、 M の大きさが異なることは、ESR に、どのように反映するのであるか (H_0 の経路に対する疑問)。さらに、"partial disorder" における緩和は、通常の反強磁性体の緩和現象と、どう異なり、どうなのか。また、それか、ESR ($9 \sim 24 \text{ GHz}$) の時間帯にどう出現するのであるか。そして、Néel state を ground state として我々としていた反強磁性共鳴の理論が、Néel state を ground state としなくてはならないと思われ、三角格子反強磁性体の ESR に適用できるのか... 等々。さらに研究を進めたい。

REFERENCES

- (1) Y. Yokozawa, J. Phys. Soc. Japan 31(1971)1590; K. Nagata, I. Yamamoto and Y. Yokozawa,
- (2) K. Nagata and Y. Tazuke, J. Phys. Soc. Japan 32(1972)337.
- (3) J. Owen, M. E. Browne, W. D. Knight and C. Kittel, Phys. Rev. 102(1956)1501.
- (4) J. P. Jamet and A. P. Malozemoff, Phys. Rev. B18(1978)75.
- (5) I. Yamada, Reported at ICM'82 at Kyoto; to be published in Physica.
- (6) A. J. Heeger, A. M. Portis, D. T. Teaney and G. Witt, Phys. Rev. Letters 7(1961)307.
- (7) K. Lee, A. M. Portis and G. Witt, Phys. Rev. 132(1963)144.

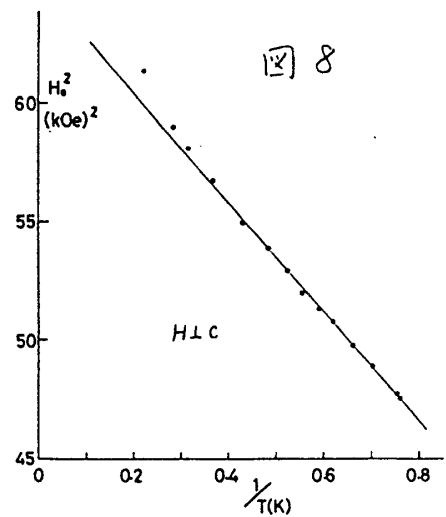


図8. ∇Br_2 : 24 GHz , $T < T_N$ での $H_0^2 \sim 1/T$.