

## イジング反強磁性体 Fe 化合物の磁場－温度相図

理化学研究所 香取 浩子<sup>1</sup>

Fe<sup>2+</sup> を含む層状ハロゲン化物磁性体はイジング反強磁性体として古くから知られている。しかし、最近の研究により、FeBr<sub>2</sub> および FeI<sub>2</sub> において特異な磁場誘起相転移の存在が明らかとなった。以下では、磁場中比熱・磁化過程などの測定結果から決定されたそれぞれの物質の磁場－温度相図の詳細について報告する。

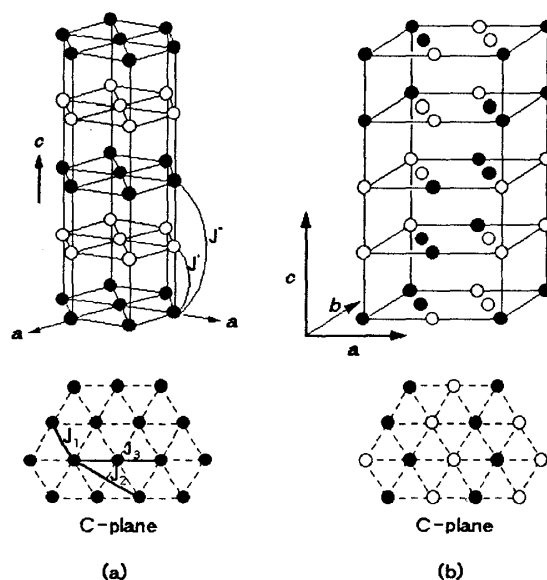


図 1: FeBr<sub>2</sub>(a) と FeI<sub>2</sub>(b) の磁気構造。●：上向きスピン、○：下向きスピンを示す。

FeBr<sub>2</sub>、FeI<sub>2</sub> はともに CdI<sub>2</sub> 型 ( $P\bar{3}m1$ ) の結晶構造をとる。磁性イオン Fe<sup>2+</sup> は *c* 面内で三角格子を形成し、隣り合う Fe<sup>2+</sup> 面の間には、2 層の非磁性イオン面 (Br<sup>-</sup> 面または I<sup>-</sup> 面) が存在する。図 1 に FeBr<sub>2</sub> 及び FeI<sub>2</sub> の磁気構造を示す。いずれの試料においても、1 軸異方性が強い Fe<sup>2+</sup> スピンの磁化容易軸は *c* 軸である。FeBr<sub>2</sub> では、 $T_N=14.2$  K 以下で *c* 面内では Fe<sup>2+</sup> スピンが強磁性的、*c* 面間では反強磁性配列をして反強磁性体となる。そのため、*c* 軸平行に磁場を印加すると 3 T 付近でメタ磁性転移を起こす。一方、FeI<sub>2</sub> では、 $T_N=9.3$  K 以下で (b) に示すような *c* 面内 4-sublattice 構造が *c* 軸方向に ++-- の順に重なった commensurate 構造を形成するため、多段のメタ磁性転移を起こす。

図 2(a) に 2.4 T の磁場中で得られた FeBr<sub>2</sub> の磁気比熱の温度依存性を示す [1]。磁場中での反強磁性秩序形成を示すピーク ( $T_N(H)=11.8$  K) より低温側に、ゼロ磁場では観測されなかったスパイク状のピークとなだらかな肩が観測された。その様子は、 $T_N(H)$  での

<sup>1</sup>E-mail: katori@postman.riken.go.jp

ピークのすそ野を差し引いた挿入図に顕著に現れており、スパイク状のピーク ( $T_1(H)=8.2$  K) はなだらかな山 ( $T_-(H)=7.6$  K) の少し高温側に位置している。 $T_1(H)$  におけるピークは、磁場中比熱の測定によって初めて観測されたものであり、磁場誘起相転移の存在を示している。一方、 $T_-(H)$  における異常は、交流帯磁率の測定 [2] や Mössbauer 分光の測定 [3] でも観測されており、スピンの  $c$  面内成分の non-critical fluctuation によるもので、熱力学相転移ではないと報告されている。比熱の測定からも  $T_-(H)$  における転移は熱力学相転移ではないことが明らかとなった。

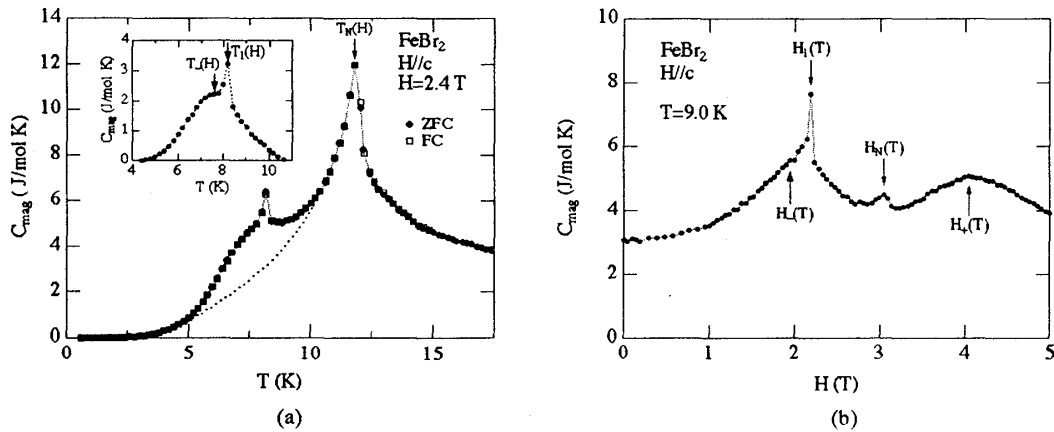


図 2: FeBr<sub>2</sub> の磁場中比熱の温度依存性 (a) と磁場依存性 (b)。

図 2(b) に 9.0 K で得られた FeBr<sub>2</sub> の磁気比熱の磁場依存性を示す。2つのピークと2つのブロードな山が観測された。図中に示した転移磁場のうち、 $H_1(T)$  におけるスパイク状のピークは新たな磁場誘起相転移を、 $H_N(T)$  におけるピークは反強磁性転移を示す。従って、 $H_1(T)$  と  $H_N(T)$  はそれぞれ  $T_1(H)$  と  $T_N(H)$  に対応する。一方、 $H_-(T)$  と  $H_+(T)$  は non-critical fluctuation による異常である。

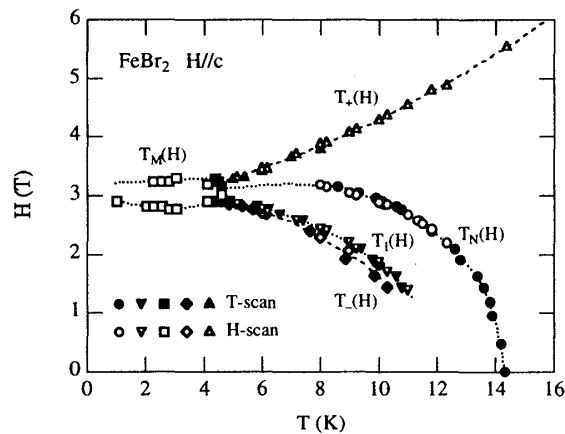


図 3: FeBr<sub>2</sub> の磁場-温度相図。

図3に磁場中比熱の測定から決定した磁場-温度相図を示す。メタ磁性転移 ( $T_M(H)$ )、反強磁性転移 ( $T_N(H)$ ) のほかに新しい磁場誘起相転移 ( $T_1(H)$ ) の相境界線が存在する。得られた磁場-温度相図は平均場理論やシミュレーションから予想されていたもの [4] と定性的に一致している。

この  $T_1(H)$  における転移の起源を調べるために、磁場中での中性子散乱の実験を行った [5, 6]。その結果、イジング物質だと考えられていたにもかかわらずゼロ磁場においても  $T_N(H)$  以下でスピンの  $c$  面内成分が存在すること、及び、新たな磁場誘起相転移はスピンの  $c$  面内成分の  $c$  軸方向の秩序が反強磁性から強磁性に変化することによって生じる相転移であることが明らかとなった。1 軸異方性が強い  $\text{Fe}^{2+}$  スピンに  $c$  面内成分が存在する原因として off-diagonal exchange の存在が考えられるが、その詳細は現在のところ明らかになっていない。

$\text{FeI}_2$  は複雑な磁気構造が原因で低温で5段のメタ磁性転移を起こすことが報告されている [7]。しかし、我々が磁化過程を精密に測定した結果、図4(a)に示すように、より複雑な磁化過程を示すことが明らかとなった。また、図4(b)に示すように磁場中比熱の温度依存性にも複数の磁場誘起相転移が観測され、それらの転移温度は磁場に大きく依存することが明らかとなった。

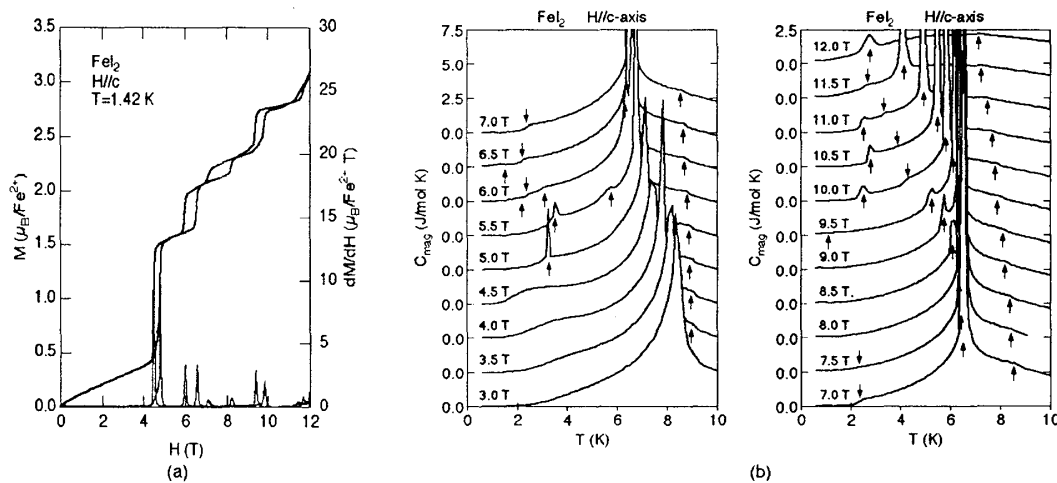


図4:  $\text{FeI}_2$  の磁化過程 (a) と磁場中比熱 (b)。

以上のような磁化過程及び磁場中比熱の測定結果から得られた  $\text{FeI}_2$  の磁場-温度相図を図5に示す。以前に報告されていた相図 [7] より、多くの相が観測された。

$\text{FeI}_2$  の交換相互作用定数は中性子散乱の実験 [7] から求められているが、その値は平均場理論を用いた三角格子に対する厳密解 [8] と一致していない。現在、交換相互作用を  $c$  面内は  $J_1, J_2, J_3$  まで、 $c$  面間は  $J', J''$  までを取り入れた  $\text{FeI}_2$  モデルに対してモンテカルロシミュレーションを行い、交換相互作用定数の評価および磁場-温度相図の再現を試みている。

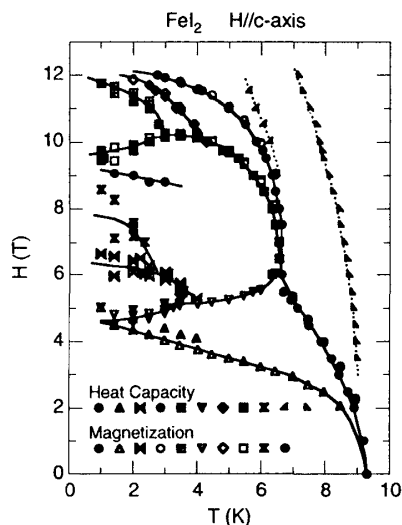


図 5: FeI<sub>2</sub> の磁場-温度相図。

### 参考文献

- [1] H. Aruga Katori, K. Katsumata and M. Katori, Phys. Rev. B **54** (1996), R9620.
- [2] M. M. P. de Azevedo, Ch. Binek, J. Kushauer, W. Kleemann, and D. Bertrand, J. Magn. Magn. Mater. **140-144** (1995), 1557.
- [3] J. Pelloth, R. A. Brand, S. Takele, M. M. P. de Azevedo, W. Kleemann, Ch. Binek, J. Kushauer, and D. Bertrand, Phys. Rev. B **52** (1995), 15372.
- [4] K. Motizuki, J. Phys. Soc. Jpn. **14** (1959), 759; Y. L. Wang and J. D. Kimel, J. Appl. Phys. **69** (1991), 6176.
- [5] K. Katsumata, H. Aruga Katori, S. M. Shapiro and G. Shirane Phys. Rev. B **55** (1997), 11466.
- [6] Ch. Binek, T. Kato, W. Kleemann, O. Petravic, D. Bertrand, F. Bourdarot, P. Burlet, H. Aruga Katori, K. Katsumata, K. Prokes and S. Welzel, Euro. Phys. J. B **15** (2000), 35.
- [7] A. Wiedenmann, L. P. Regnault, P. Burlet, J. Rossat-Mignod, O. Kounde, and D. Billerey, J. Magn. Magn. Mater. **74** (1988), 7.
- [8] Y. Tanaka and N. Uryu, Prog. Theor. Phys. **55** (1976), 1356; M. Kaburagi and J. Kanamori, J. Phys. Soc. Jpn. **44** (1978), 718.