

C₆Eu における 4-spin 相関

阪大理

榊原 俊郎

伊達 宗行

筑波大物質工

斎栄松 宏仁

§1 序

4体のスピニ交換相互作用が現実の物質に見出されたのは bcc ³He が最初の例¹⁾であるが、その後、NiS₂ に導入されその磁気構造の説明に成功して以後、急速に関心が高まっている。^{2), 3)} 最近、我々の測定した C₆Eu の強磁場磁化過程は、通常の Heisenberg 型交換相互作用だけでは説明できず、4体の交換相互作用をとり入れることによってきわめて自然に理解できる事がわかった。これは後で述べるように RKKY 系における 4-spin 相互作用の最初の例であると思われる。

§2 実験結果

C₆Eu の結晶構造を図 1 に示す。この物質はいわゆる第 1 ステージ層間化合物であり、図の様に各グラファイト層間にインターカレートした Eu 層が三角格子を組んでいる。Eu についてのみ着目すれば hcp 構造

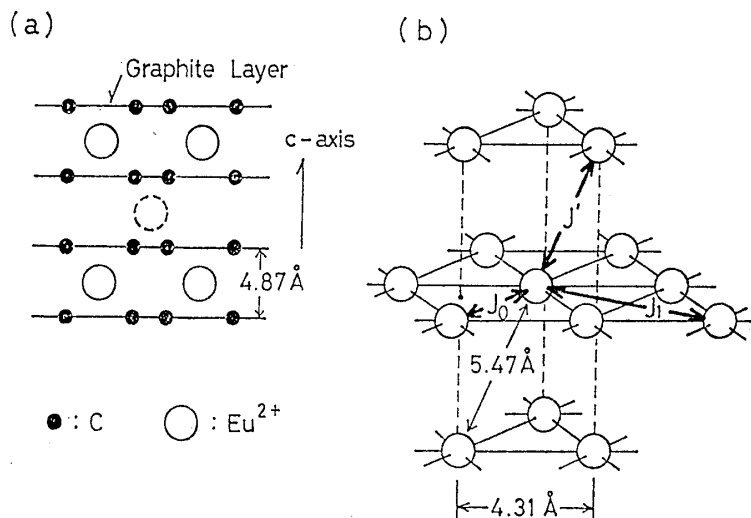
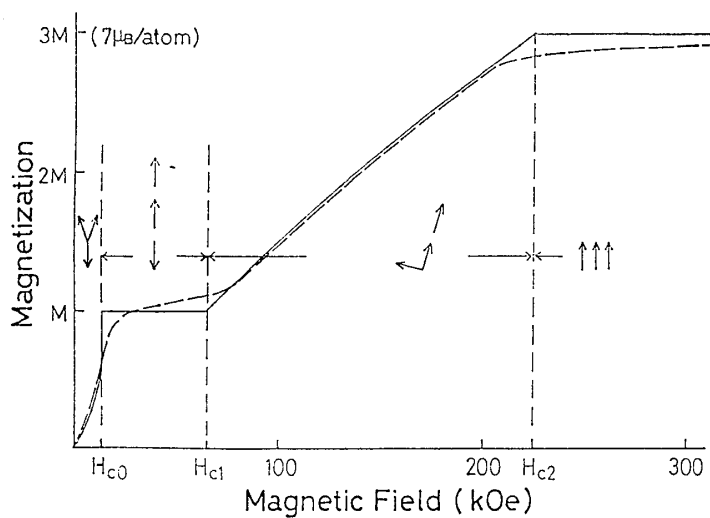


図1 C₆Eu の結晶構造

である。Eu イオンは 2 価の状態(⁸S_{7/2})にあり、約 40 K に T_N を持つ。帯磁率測定によると C 面内の異方性は小さく、C 軸方向に異方性を持った easy plane 型磁性体と考えられる。また、Eu から グラファイトの π-band に electron が移るために π-band は metallic になり、C 面内は 4.2 K

において約 $10^6 (\Omega \text{ cm})^{-1}$ と高い電気伝導度を示す。一方、c 軸方向の伝導度はこれより 2 桁程小さい。⁴⁾ さて、我々は CeEu の 4.2K、400 kOe までの c 面内磁化測定を行なった結果、図2の点線に示すような磁化曲線を得た。

特徴は飽和磁化 (μ_B/Eu) の約 $1/3$ のプラト- (フェリ状態) が見られることである。このプラト-は温度を上げていくと約 30K でなくなる。また、c 軸方向磁化には無い。⁵⁾



§3 議論

ところで 図1に示したような bi-linear な exchange だけを考える限り、このような三角格子 easy plane 型磁性体の面内磁化において $1/3$ 磁化のメタ磁性はあり得ないことが証明される。この理由は exchange J_0, J_1, J' をどのようにとっても 図3(b)に示す $1/3$ 磁化を持つフェリ状態の free energy が

図2 CeEu の磁化過程 $H \parallel c$ 面、4.2K
点線が実験、実線が理論

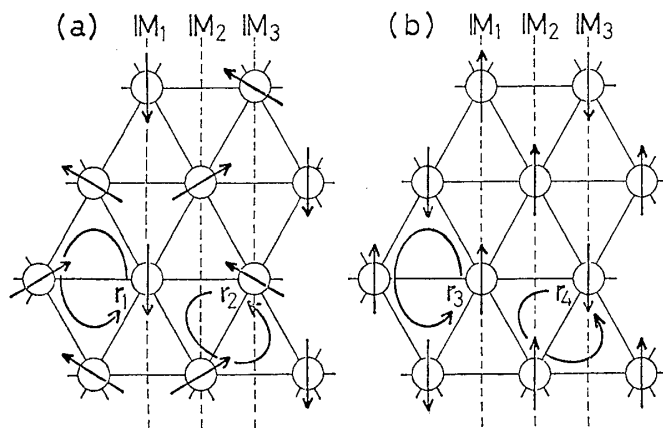


図3. スピニ構造. (a)は三角配列
(b)はフェリ状態

同図(a)の三角配列 (linear な磁化を示す) よりも低くはならないためである。さらに、この事情は両者が同じ 3-sublattice $M_1 \sim M_3$ で記述できることからくるため、いかに遠方のスピニとの交換相互作用をとり入れてもこの関係は変わらない。また、 Eu^{2+} は S-state ion であり、実験的に強い面内異方性はないので、異方性で説明することと困難である。そこで我々は この系に以下に示す bi-quadratic exchange 及び 4-spin exchange

$$\mathcal{H}_B = -B \sum_{ij} (\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j)^2 \quad (1)$$

$$\mathcal{H}_K = K \sum_{ijkl} \{ (\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j)(\vec{S}_k \cdot \vec{S}_l) + (\vec{S}_i \cdot \vec{S}_k)(\vec{S}_j \cdot \vec{S}_l) - (\vec{S}_i \cdot \vec{S}_l)(\vec{S}_j \cdot \vec{S}_k) \} \quad (2)$$

をとり入れ、分子場近似による解析を行なった。4-spin exchange については図3 Y₁~Y₄の4種類の nearest neighbor step を考慮した。この結果を図1の実線に示す。bi-quadratic および 4-spin exchange のいずれも、3角配列に対してフェリ状態のエネルギーを下げるために 比較的low磁場(H_{C0})で3角→フェリの転移がおこる。しかし、bi-quadratic exchange だけではフェリからフェロへの磁化過程が正の曲率を持ち、実験と合わない。実際、得られたパラメータを表1に示すが bi-quadratic exchange B は 4-spin exchange K にくらべて小さい。2体の nearest neighbor exchange J₀ と比べ、B, K の大きさは1%以下で、これは面内RKKY相互作用であることを考えると reasonable である。しかしスピンの大きいので、エネルギーで比較すると10%近い大きさになる。

Obtained Values		
1. Experimental Values of three critical fields (kOe)		
H _{C0} = 16 ± 1	H _{C1} = 64 ± 1	H _{C2} = 220 ± 5
2. Obtained Parameters		
H _{C1} = $\frac{2(3J_0 - 2J')S}{9\mu_B} = 65 \pm 1$ kOe		
Exchange Interaction	2 - Spin	4 - Spin
nearest neighbor (intra-plane)	$\frac{J_0}{K} = 0.5 \pm 0.1K$ (AF)	$\frac{BS^2}{K} = 0.02 \pm 0.005K$
		$\frac{KS^2}{K} = 0.05 \pm 0.01K$
		$\frac{B}{J_0} = 0.004 \pm 0.001$
next neighbor (intra-plane)	$\frac{J_1}{K} = 0.4 \pm 0.1K$ (F)	
nearest neighbor (inter-plane)	$\frac{J'}{K} = 0.1 \pm 0.1K$ (F)	

表 1

文献

- 1) M. Rogers, J.M. Delrieu and J.H. Hetherington : Phys. Rev. Lett. 45 (1980) 137.
- 2) A. Yoshimori and S. Inagaki : J. Phys. Soc. Jpn. 44 (1978) 101, 55 (1981) 769.
- 3) K. Yosida : Prog. Theor. Phys. Suppl. 69 (1980) 475.
- 4) H. Suematsu, K. Ohmatsu and R. Yoshizaki : Solid State Commun. 38 (1981) 1103.
- 5) H. Suematsu, K. Ohmatsu, K. Sugiyama, T. Sakakibara and M. Date : Solid State Commun. 40 (1981) 241.