

C₆Eu の ESR

西谷龍介、大松一也、村田峰生、寿栄松宏仁 (筑波大学 物質工学)

1. はじめに

C₆Eu はグラファイト層間に希土類金属 Eu を挿入したオーステージ・グラファイト層間化合物であり、4 スピン間交換相互作用が顕著な役割を示す新しい RKKY 型磁性物質として注目されている。

C₆Eu の磁性を担うものは Eu 4f 電子であり、C₆Eu 中の Eu は 2価イオンとなり $S_{7/2}$ の状態になっている。またグラファイト層間で Eu は 2次元三角格子を組み、最近接スピン間には反強磁性的 ($J < 0$) 相互作用が働き、オーステージ層間には強磁性的 ($J > 0$) 相互作用が働くとされている。

C₆Eu の磁化過程には 200 kG までに多様な磁気状態が出現するが¹⁾、これらの磁気構造は、2 スピン間交換相互作用以外に 4 スピン間交換相互作用を含ませることにより Date らによって明らかにされた²⁾。すなわち、低磁場側から三角スピン配列 (Anti Ferro state: 0 kG - 20 kG)、フェリ磁性 (Ferri state: 20 kG - 80 kG) を経て強磁性 (Ferro state: ~200 kG 以上) を示す。(図 1) このうちフェリ磁性相は 4 スピン間交換相互作用を考慮することによってのみ出現する。

このように、高磁場での磁気構造は明瞭に説明されたが、低磁場 (20 kG 以下) 低温 (40 K 以下) での磁気構造は、Anti Ferro state のみを考えたのでは説明されない実験事実³⁾ (磁化等) があり、明らかになっているとはいえない。そこで、4 スピン間交換相互作用を考慮した三角部分格子のエネルギーを最小にするスピン配列を検討した。その結果、4 スピン間交換相互作用が 2 スピン間交換相互作用の 20% 程度の強さをもつならば、ある温度ですなわち 4 スピン間相互作用の温度依存性を通してある相互作用の強さのとき、Ferri state がエネルギー最小のスピン配列となる可能性がある。

我々は、上述のような低温低磁場における磁気構造を明らかにするため C₆Eu の ESR を測定した。

2. 結果

実験に用いた C₆Eu は HOPG から作成したものである。図 2 に ESR スペクトルの温度依存性を示す。ここでは磁場を面内方向 ($H \perp c$) にかけた場合の結果を示している。これには

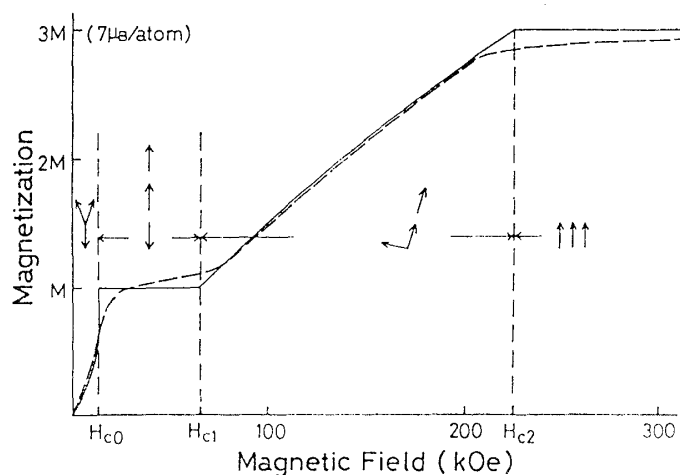


図 1. (Date らによる)

次のような特徴がみられる。(i) $T_N = 40\text{K}$ で常磁性相から Anti Ferro 相へ転移するとされているがこの温度前後では line shape に特別な変化はみられない。(ii) 温度を下げるに従い 20 K 程までスペクトルは低磁場へシフトしている。すなわち共鳴磁場が低磁場へシフトする。(iii) $\sim 20\text{K}$ 以下で line shape は著しく変化している。(i) (iii) の特徴は $H \parallel c$ の場合の結果にも共通している。 $H \parallel c$ の場合の共鳴磁場は $H \perp c$ の場合の逆の高磁場へ shift する。図 3 は g 値の温度依存を示したものであり、 $\sim 20\text{K}$ で発散の傾向を示している。

$T_N = 40\text{K}$ 前後で 常磁性相から Anti Ferro 相に転移しても line shape に特に変化がみられないのは、三角スピン配列 (Anti Ferro state) でのスピン共鳴条件のひとつが常磁性共鳴条件 ($\omega = \gamma H$) に似たものになりそれを観測しているためである。 g 値が図 3 のように温度を下げるにしたがって $g \approx 2$ からずれていく現象は、低次元磁性体の常磁性相においてよくみられるものである。すなわち帯磁

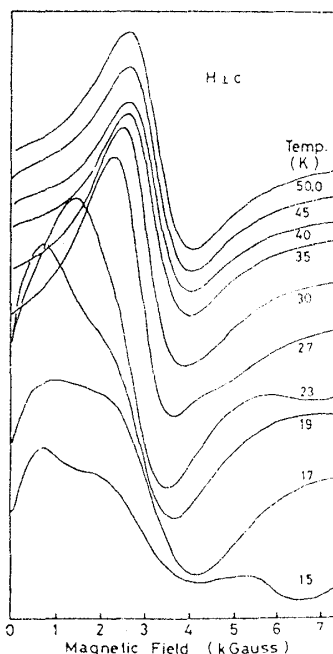


図 2.

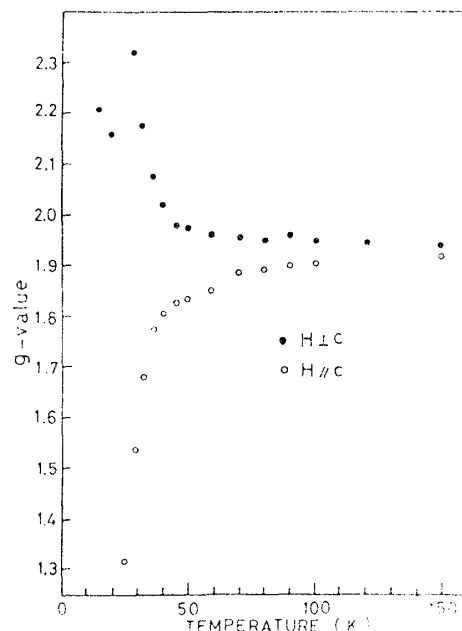


図 3.

率 χ の温度変化を通して常磁性相の g 値が温度変化する現象が、 CeEu の場合上述の理由で常磁性、反強磁性相を通じて出現したものと思われる。 $T_N = 40\text{K}$ 付近で特別な g 値の変化がみられないのは CeEu の χ の温度依存自身 $T_N = 40\text{K}$ で critical な変化がないためである。

$T = 20\text{K}$ 付近で g 値に発散がありまたこの温度以下では line shape に顕著な相異があることは、 20K 以下に何らかの新しい磁気構造の存在を示唆している。この温度付近での異常は比熱の測定においても出現している。低磁場 ($\sim 0\text{G}$) における磁化の温度依存性において $T = 20\text{K}$ 以下で磁化が生じていることなどを考慮すると、この新しい磁気構造の候補としては、はじめに述べたように 4 スピン同相互作用が温度低下とともに強くなり出現する新しいフェリ磁性相の可能性があると思われる。

有益な議論をしていただいた本河光博、榊原俊郎の両氏に感謝します。

文献 1) Suematsu et al., Solid State Commun. 40, 241 (80).

2) Date et al., in preparation.

3) Suematsu et al., Solid State Commun. 38, 1103 (81).