

# 中性子回折法による六方晶フェライトの超交換相互作用の研究

東理大・理工 内海 重宜, 桃沢 信幸  
 東北大・金研 大山 研司

## 1. はじめに

六方晶フェライト  $\text{Ba}_2\text{Zn}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$  および  $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$  は実用上極めて重要な酸化物磁性体であり, その磁気特性の改良が常に望まれている。これらの磁性体は共線的なフェリ磁気構造を取るため, 超交換相互作用の見積もりが困難である。このことが, 磁気特性改良のネックとなっている。本研究では, 六方晶フェライトの例として  $\text{Ba}_2\text{Zn}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$  について検討した。この物質に Sr イオンを添加した  $(\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{Zn}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$  では, 非共線的なヘリカル磁気構造が発現する。このヘリカル磁気構造を詳しく解析して, 超交換相互作用の強さを決定した。

## 2. 研究経過

$(\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{Zn}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$  単結晶は,  $\text{Na}_2\text{O}-\text{Fe}_2\text{O}_3$  フラックス法を用いて育成した。ここで  $x$  は Sr 濃度である。中性子回折測定は,  $T=296\text{ K}$  において  $(00\cdot l)$  回折パターンを取った。核散乱強度を解析して, Sr 添加による格子の歪みと陽イオン分布を決定した。磁気散乱強度を解析して, ヘリカル磁気構造を詳細に決定した。Free Energy に基づいて超交換相互作用を考察し, その強さを見積もった。

## 3. 研究成果

図 1 に  $\text{Ba}_2\text{Zn}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$  の結晶構造図を示す。ここで,  $z$  は  $c$  軸方向の座標,  $j$  はイオンの層番号を表す。イオンは,  $c$  軸に沿って  $j=1-12$  層 ( $z=0-1/6$ ) と  $j=12-1$  層 ( $z=1/6-1/3$ ) が積み重なった構造を取る。Sr イオンは  $j=3$  層目の Ba イオンの位置を置換する。また, 図 1 中の矢印は鉄イオンの持つ磁気モーメント, 実線は超交換相互作用の path ( $\text{Fe}(j)-\text{O}(j')-\text{Fe}(j'')$ ) を示す。図から分かるように, 3 つの超交換相互作用  $\text{Fe}(4)-\text{O}(2)-\text{Fe}(5)$ ,  $\text{Fe}(4)-\text{O}(6)-\text{Fe}(8)$ ,  $\text{Fe}(5)-\text{O}(7)-\text{Fe}(8)$  の competing がある。Sr イオンを添加すると, 磁気モーメントの向きは表 1 の様になり, ヘリカル磁気構造が発現する。ここで, 磁気モーメントはすべて  $c$  面内に横たわり, ヘリックスは  $c$  軸方向に伝播する。また,  $\phi_0$  はヘリカルのターンアングル,  $\phi_5$  は  $j=5$  層目磁気モーメントの回転角である。 $(\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{Zn}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$  のヘリカル磁気構造は  $\phi_0$  および  $\phi_5$  で特徴付けられる。

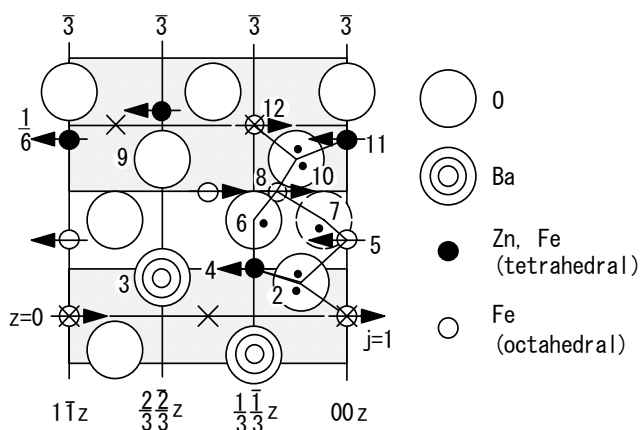


図 1  $\text{Ba}_2\text{Zn}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$  の  $(1\bar{1}0)$  断面図

層番号	フェリ磁気構造	ヘリカル磁気構造
$j$	$\psi_j$ (degree)	$\Psi_j$ (degree)
1	0	0
4	180	180
5	180	$180+\phi_5$
8	0	$\phi_0/2$
11	180	$180+\phi_0/2$
12	0	$\phi_0/2$

超交換相互作用を  $-J_{jj'}\mu_j\mu_{j'}\cos(\Psi_j - \Psi_{j'})$  と書けば、超交換相互作用エネルギー  $E_{ex}$  は  $\phi_0$  と  $\phi_5$  を用いて、

$$E_{ex} = -J_{45}\gamma\mu^2\cos\phi_5 + J_{48}\gamma\mu^2\cos\frac{\phi_0}{2} + J_{58}\mu^2\cos\left(\frac{\phi_0}{2} - \phi_5\right). \quad (1)$$

と書ける。ここで、 $J_{jj'}$  は交換積分、 $\gamma$  は Zn イオンの分布を表すパラメータである。Free Energy より  $\phi_0$  と  $\phi_5$  は次式で与えられる。

$$\cos\frac{\phi_0}{2} = \frac{1}{2} \cdot \frac{J_{45}}{\gamma J_{58}} \left[ \left( \frac{J_{58}}{\gamma J_{45}} \right)^2 - \left( \frac{J_{58}}{\gamma J_{48}} \right)^2 + 1 \right], \quad (2)$$

$$\cos\phi_5 = \frac{1}{2} \cdot \frac{J_{48}}{\gamma J_{58}} \left[ \left( \frac{J_{58}}{\gamma J_{45}} \right)^2 - \left( \frac{J_{58}}{\gamma J_{48}} \right)^2 - 1 \right]. \quad (3)$$

ヘリカルのターンアングル  $\phi_0$  と  $j=5$  層目磁気モーメントの回転角  $\phi_5$  の Sr 濃度依存性を、中性子回折パターンの解析より図 2 のように決定した。図 2 の結果と式(2)(3)を用いて、交換積分  $J_{45}/J_{58}$ 、 $J_{48}/J_{58}$  を図 3 の様に決定した。Sr 濃度の増加に伴い、 $J_{48}/J_{58}$  が小さくなることから、ヘリカル磁気構造が発現する原因である。さらに、 $x > 0.794$  で  $J_{45}/J_{58}$  と  $J_{48}/J_{58}$  の大小が入れ替わり、 $\phi_0 = 180^\circ$  つまりアンチフェロ磁気構造が発現する。

#### 4. まとめ

$(\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{Zn}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$  で発現するヘリカル磁気構造を詳しく解析し、Free Energy の立場から、超交換相互作用の強さ  $J_{45}/J_{58}$ 、 $J_{48}/J_{58}$  の Sr 濃度依存性を決定した。Sr 濃度の増加に伴い、 $J_{45}/J_{58}$  が著しく減少することがヘリカル磁気構造発現の原因である。本研究では、特定の試料について検討したが、超交換相互作用に対する実験方法やデータ解析法は、他の酸化物磁性体にも拡張可能である。

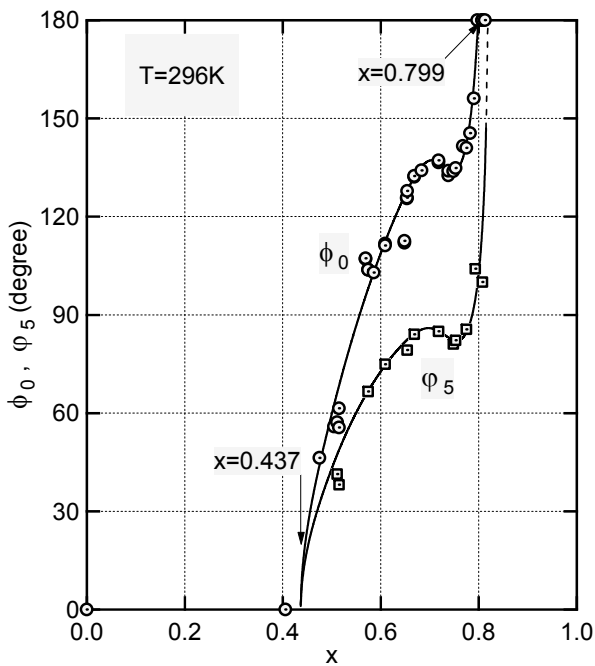


図 2 ヘリカルのターンアングル  $\phi_0$  と  $j=5$  層目磁気モーメントの回転角  $\phi_5$  (実測値と理論値)

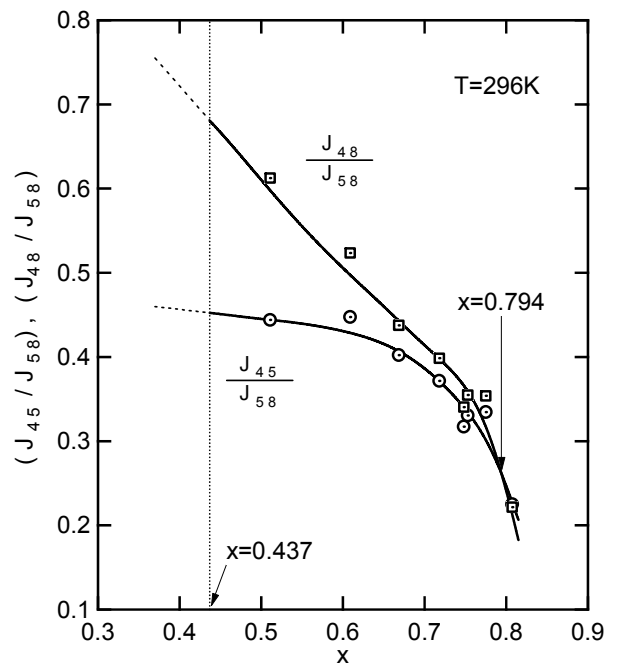


図 3  $J_{45}/J_{58}$  と  $J_{48}/J_{58}$  の Sr 濃度  $x$  依存性。ヘリカル磁気構造は  $x > 0.437$  で発現する。