層状三角格子 XY-ハイゼンベルグ反強磁性体の相図

渡会 征三 (摂南大学工学部) * 宮下 精二 (東京大学工学部) **

§1. 序説

層状三角格子反強磁性体ではフラストレーションのために様々な相が競合して現れることが多い[1-5]。本稿ではXY-ハイゼンベルグ型の (古典スピン系) 層状三角格子反強磁性体の温度-磁場相図をモンテカルロ法で調べた結果について報告する。量子系のモデルでは基底状態に対する量子揺らぎの効果が議論されている[6-8]。次のようなモデルハミルトニアン

$$\mathcal{H} = \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \boldsymbol{S}_i \cdot \boldsymbol{S}_j - D \sum_i (S_i^z)^2 - H \sum_i S_i^z, \quad (1.1)$$

をとり、簡単のため J_{ij} は面内では正の J、層間では負の $-J$ とし、$D < 0$ の場合の XY 型, $D = 0$ の場合のハイゼンベルグ型において磁場と温度を変化させたときどのような相変化が見られるか調べて行く。この系は例えば $CsCuCl_3$ の物質にあてはまると思われている[9,10]。このハミルトニアンの基底状態は D の値によって変化するが Fig.1 のスピン配置に対しエネルギーは

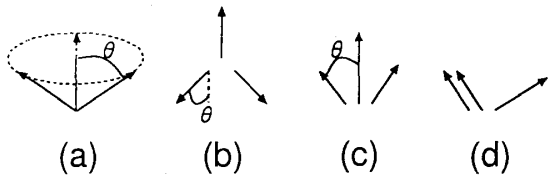


Fig. 1. 磁場中のスピン配置: (a) umbrella 構造, (b) distorted-120° 構造, (c) fan 構造, (d) v-shape 構造.

$$E_{\rm a} = \quad - \frac{H^2}{2(9-2D)} - \frac{3}{2}, \quad (1.2)$$

$$E_{\rm b} = -\frac{(3+H)^2}{2(9-3D)} - 1 - \frac{H-D}{3}, \quad (1.3)$$

$$E_{\rm c} = -\frac{(H-3)^2}{2(9-D)} - 1 - \frac{D+H}{3}. \quad (1.4)$$

となり、$E_{\rm a}, E_{\rm b}, E_{\rm c}$ に対する角度 θ はそれぞれ

$$\cos\theta = \frac{H}{9-2d}, \quad (1.5)$$

$$\cos\theta = \frac{(3+H)}{2(3-D)}, \quad (1.6)$$

$$\cos\theta = \frac{H-3}{2(3-D)}, \quad (1.7)$$

のように与えられる。また、$E_{\rm d}$ は数値計算で求められる。

各相を区別するために、カイラリティ(chirality)[11]

$$\boldsymbol{K} = \frac{2}{3\sqrt{2}} \sum_{i\in{\rm A}, j\in{\rm B}, k\in{\rm C}} \boldsymbol{S}_i \times \boldsymbol{S}_j + \boldsymbol{S}_j \times \boldsymbol{S}_k + \boldsymbol{S}_k \times \boldsymbol{S}_i, \quad (1.8)$$

及び副格子磁化

$$\boldsymbol{N}_{\rm A} = \sum_{i\in{\rm A}} \boldsymbol{S}_i \quad (1.9)$$

($\boldsymbol{N}_{\rm B}$ と $\boldsymbol{N}_{\rm C}$ も同様) を定義する。また通常の non-collinear 構造を見分けるために副格子磁化の外積

$$\boldsymbol{S}^{\rm AB} = \sum_{\rm AB} \boldsymbol{N}_{\rm A} \times \boldsymbol{N}_{\rm B}, \quad {\rm etc.}, \quad (1.10)$$

を用いたオーダーパラメーター ($N = L^3$ はスピン総数とする)

$$S_{xy} = S_x + S_y, \quad (1.11)$$

$$S_\alpha \equiv \frac{1}{N^2} \left[(S_\alpha^{\rm AB})^2 + (S_\alpha^{\rm BC})^2 + (S_\alpha^{\rm CA})^2 \right], \quad (1.12)$$

も併せて定義する。すると例えば Fig.1(a) の umbrella 構造に対しては

$$\kappa_z \equiv \frac{1}{N^2} \langle K_z^2 \rangle \quad (1.13)$$

と S_{xy} が極限 $N \to \infty$ でゼロでない値をとり、Fig.1(b) の distorted-120° 構造では κ_z の代わりに

$$\kappa_{xy} \equiv \frac{1}{N^2} \langle K_x^2 + K_y^2 \rangle \quad (1.14)$$

がゼロでない値をとる。また Fig.1 には表されていない配位、collinear(up,up,down) 構造では $\boldsymbol{K}, S_\alpha$ ともに消えて副格子磁化の $z-$ 成分がオーダーパラメータとなる。更に磁化過程

$$\boldsymbol{M} = \boldsymbol{N}_A + \boldsymbol{N}_B + \boldsymbol{N}_C. \quad (1.15)$$

についても調べる。

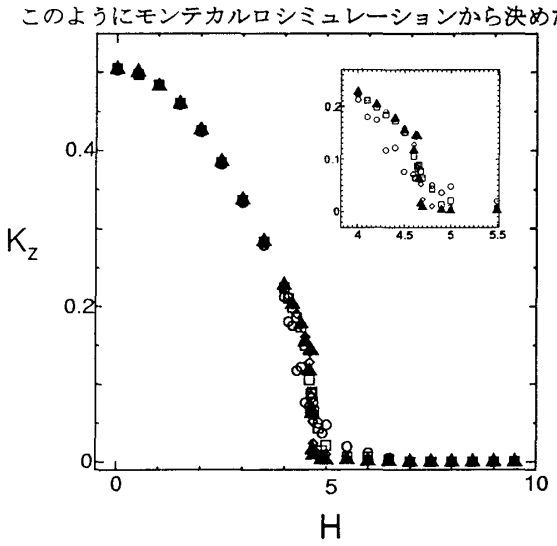
§2. 有限温度での磁場誘起相

2.1 弱い XY-型の場合

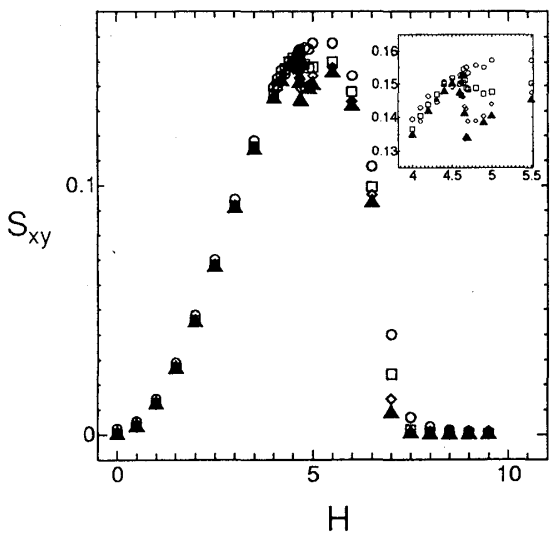
弱い XY-型の場合として $D = -0.1$ を採用する。Fig.2(a) には温度を $T = 0.5$ に固定した κ_z の磁場依存性が示されている。κ_z は $H_{c1} \simeq 5.0$ の付近で不連続的に減少している。Fig.2(b) には S_{xy} もまた H_{c1} で不連続である様子が示されている。この Fig.2 から、(パラ相に入る前の) 高磁場相は non-collinear 構造であることがわかる。これが Fig.1(d) の v-shape 構造である。

* E-mail address: watarai@mpg.setsunan.ac.jp
** E-mail address: miya@yuragi.t.u-tokyo.ac.jp

このようにモンテカルロシミュレーションから決めた弱



(a)



(b)

Fig. 2. (a) κ_z の磁場依存 (b) S_{xy} の磁場依存 ($T = 0.5, D = -0.1$)。各シンボル, circle, square,diamond, triangle はサイズ $L = 12,18,24,30$ に対応する。最大の L のシンボルは塗りつぶしてある。このノーテイションは以後も同様とする。

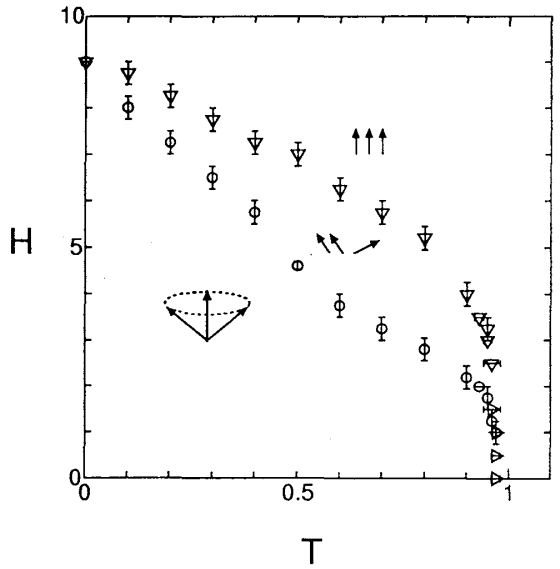


Fig. 3. 弱い XY-型 ($D = -0.1$) の場合の相図。縦のエラーバー付きシンボルは温度固定の場合の H_c を、横のエラーバー付きシンボルは磁場固定の場合の T_c を表す。

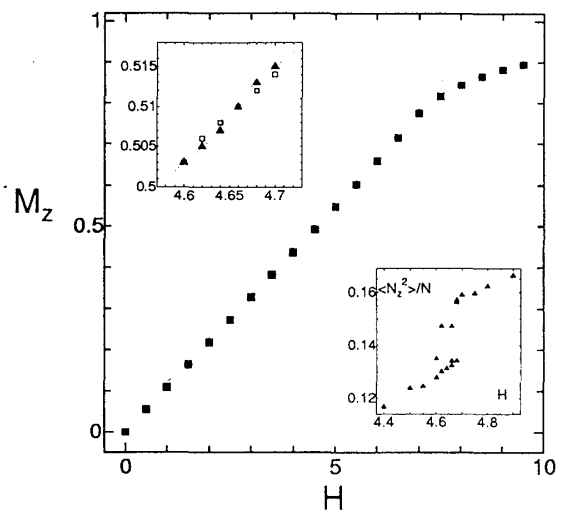


Fig. 4. 弱い XY-型の場合の磁化過程 ($L = 30$ のデータ)。転移点付近の拡大図は上側は磁化過程を、下側が副格子磁化の $z-$ 成分 ($\langle N_z^2\rangle/N^2$) を示す。

い XY-型 ($D = -0.1$) の場合の相図が Fig.3 に示されている。Fig.4 は弱い XY-型の場合の磁化過程を示している。この図で磁化の跳びは ($H \sim 4.6$ で) 非常に小さいが上側の拡大図からわかるように跳びは明確に存在する。また下側の挿図は $[\langle(N_A^z)^2 + \langle(N_B^z)^2 + \langle(N_C^z)^2]/N^2$ を表しているが、これより H_{c1} は一次転移点であることがわかる。

2.2 ハイゼンベルグ型の場合

上の弱い XY-型の場合と比較のためハイゼンベルグ型 ($D = 0$) の場合を調べてみる。ハイゼンベルグ型の場合、低磁場相は Fig.1(b) のスピン配位であって κ_z の代わりに κ_{xy} が nonzero-value をとる。Fig.5 に $T = 0.5$ での κ_{xy} と S_{xy} の磁場依存性が示されていてこれによると $H_{c3} \simeq 2.2$ で collinear 相 (up,up,down) へ転移、$H_{c4} \simeq 3.0$ で v-shape 構造へ、最後に $H_{c2} \simeq 6.5$ で para 相となっている。このような sweep で描いた相図を Fig.6 に示した。この図で温度軸上の○は $H = 0$ で調べられた結果 $T_c \simeq 0.958$[12] を表している。ハイゼンベルグ型の場合の磁化過程が Fig.7 に示されている。ここでは collinear 相におけるプラトーが見られ、弱い XY-型 ($D = -0.1$) の場合の Fig.4 の様子とは定性的に異なっている。

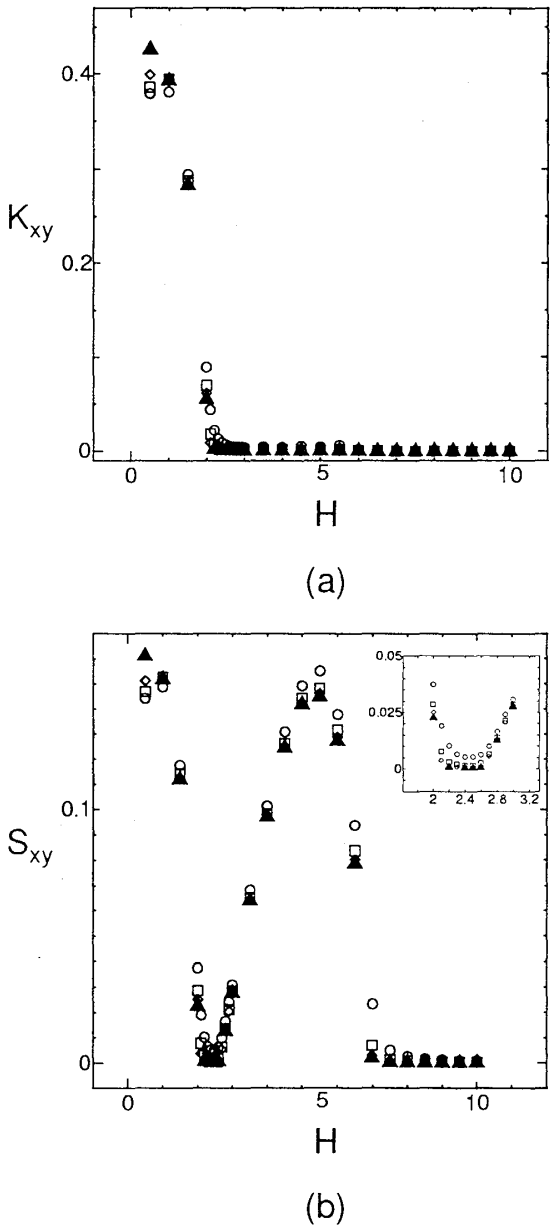


Fig. 5. ハイゼンベルグ型 ($D = 0$) の場合で $T = 0.5$ における (a) κ_z の磁場依存, (b) S_{xy} の磁場依存。挿図は collinear 相付近。

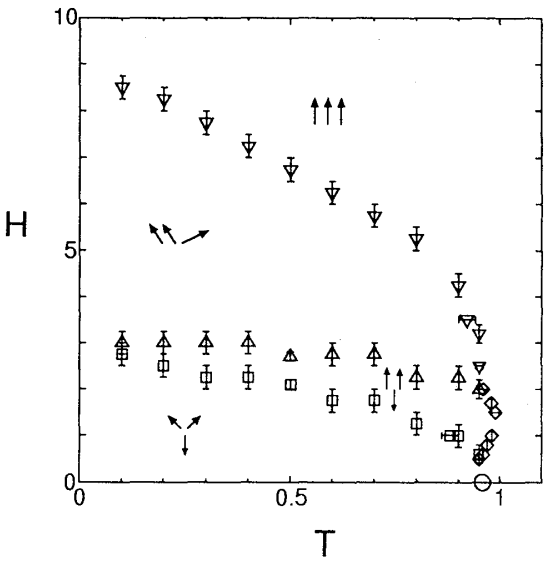


Fig. 6. ハイゼンベルグ型 ($D = 0$) の場合の相図。エラーバーについては Fig.3 と同様。

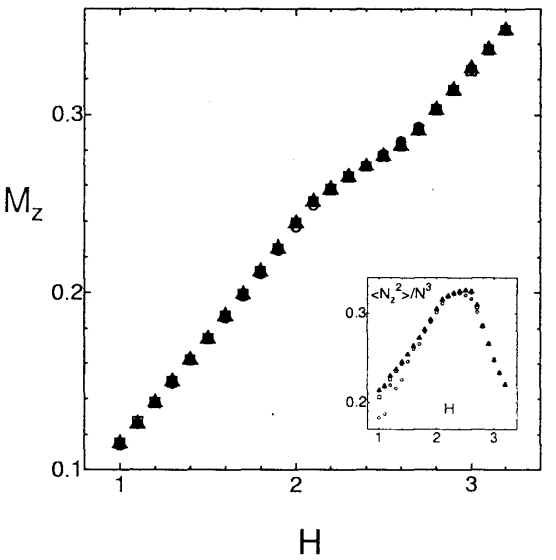


Fig. 7. ハイゼンベルグ型 ($D = 0$) の場合の磁化過程。挿図には副格子磁化の z-成分 $\langle N_z^2 \rangle / N^2$ が示されている。

§3. 非常に弱い XY-型の場合

XY-型の場合の基底状態は umbrella 型であるが高磁場状態は co-planer 相が安定である。他方ハイゼンベルグ型 ($D = 0$) の場合は有限温度で collinear 相が出現している。そこで次に非常に弱い XY-型の場合を調べてみる。ここでは、D の値を一桁下げて $D = -0.01$ とする。Fig.7 に $T = 0.5$ での κ_z と S_{xy} の比較的低い磁場での様子が示されている。これによると Fig.1(a) の umbrella 構造が $H_{c5} \simeq 1.4$ まで残ったあと Fig.1(b) の distorted-120° 構造が $H_{c3} \simeq 2.2$ まで続き、その後 collinear 相が $H_{c4} \simeq 2.6$ まで、この Fig.8 では示されていないが最後に $H_{c2} \simeq 6.5$ まで v-shape 相が続いている。

このようにしてまとめた相図が Fig.9 である。

§4. まとめ

ここまで、XY-型及びハイゼンベルグ型の層状三角格子反強磁性体の温度-磁場平面上の相変化を調べてきた。弱い XY-型、ハイゼンベルグ型、非常に弱い XY-型と共に高磁場相は同じ v-shape 構造であった。これはエントロピー効果が v-shape 構造に有利に働いているためと考えられ、量子スピン系での (量子揺らぎが働いて v-shape 構造が基底状態になる) Nikuni-Shiba[6] 機構と似ている。Fig.3, Fig.6 にみられたように弱い XY-型とハイゼンベルグ型とでは相図が質的に異なっているが、非常に弱い場合

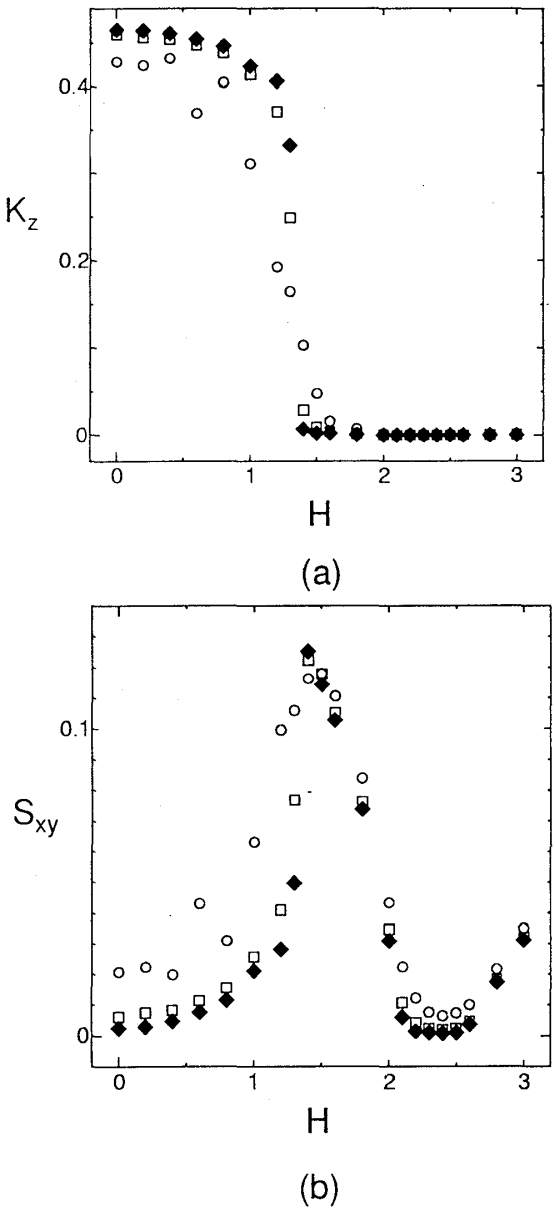


Fig. 8. $D = -0.01$ の非常に弱い XY-型における $T = 0.5$ での (a) κ_z と (b) S_{xy}。

($D = -0.01$) の相では両者が共存しているという興味深い結果が得られた。今後の課題として、更に弱い XY-型 (例えば $D = -0.001$ のように) では umbrella 構造がどこまで残るのかといった微妙な問題が残されている。

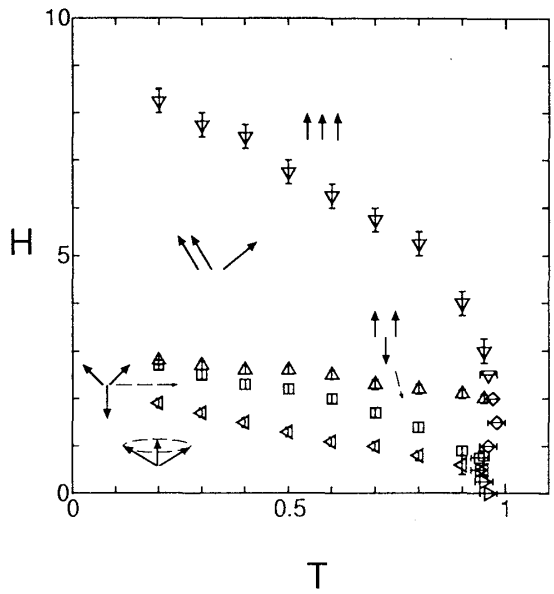


Fig. 9. 非常に弱い XY-型の場合 ($D = -0.01$) の相図。

1) S. Miyashita: J. Phys. Soc. Jpn. **55** (1986) 3605.
2) H. Kawamura: J. Phys. Soc. Jpn. **53** (1984) 2452.
3) H. Kawamura and S. Miyashita: J. Phys. Soc. Jpn. **54** (1985) 4530.
4) S. Miyashita and H. Kawamura: J. Phys. Soc. Jpn. **54** (1985) 3385.
5) S. Miyashita: Prog. Theor. Phys. Suppl. **87** (1986) 112.
6) T. Nikuni and S. Shiba: J. Phys. Soc. Jpn. **62** (1993) 3268.
7) A. E. Jacobs, T. Nikuni and S. Shiba: J. Phys. Soc. Jpn. **62** (1993) 4066.
8) T. Nikuni and S. Shiba: J. Phys. Soc. Jpn. **64** (1995)3471.
9) M. motokawa, A. Arai, H. Ohta, M. Mono, H. Tanaka and K. Ubukata: Physica B211 (1995) 199.
10) H. B. Weber, T. Werner, J. Wosnitza, H. v. Löhneysen: Phys. Rev. B54 (1996) 15924, T. Werner, H. B. Weber, J. Wosnitza, A. Kelnberger, M. Meschke, U. Schotte, N. Stüsser, Y. Ding and M. Winkelmann: Solid State Comm. **102** (1997) 609
11) S. Miyashita and H. Shiba: J. Phys. Soc. Jpn. **53** (1984) 1145.
12) H. Kawamura: J. Phys. Soc. Jpn. **61** (1992) 1299.