

三角目入りカゴメ格子磁性体の磁氣的性質

— スピン波計算とモンテカルロシミュレーション —

千葉大学自然科学研究科 名取 亮, 夏目雄平¹

三角格子、カゴメ格子など奇数の副格子を持つ化合物反強磁性体はスピンの量子性が系の持つ frustration と結びつき、豊かな量子磁性物理学を提供してきた。最近、その延長上として、実験的研究がすすめられている三角目入りカゴメ格子 (Triangulated Kagomé Lattice; TRKGM) について、理論的研究をおこなった。対象とする結晶は銅化合物 $Cu_9Cl_2(cpa)_6 \cdot xH_2O$ である。我々は、この系に対して Mekata が提案した 9 副格子の古典的 Heisenberg 模型に基づいてスピン波展開の計算を行ってその magnon 分散、量子効果によるエネルギーの低下などを調べた。分散に現れる特徴は、エネルギーがゼロで分散のないモードと、エネルギーがゼロでなく、一定の有限値で分散のないモードが出現することである。さらに、有限温度でのスピンの振る舞いを知るため Monte Carlo 計算も行った。

1 序: スピン格子点の構造

平面内の三角格子反強磁性体 (TRIA)、カゴメ格子反強磁性体 (KGMA) の理論モデルが、量子反強磁性体の理解 (概念的発展) に果たした貢献は極めて大きい。しかしながら、実験的な検証という観点からは、一つの平面だけの **TRIA**, **KGMA** そのものが忠実に実現された系があるという完全な確証は困難な状況といえる。ところが、その延長上の奇数副格子反強磁性体として、登場した、三角目入りカゴメ格子 **TRKGM** は以下で述べるように Mekata らのグループをはじめとして、実験が先行して研究が始められた [1-3]。図 1(a) に構造を示す。ここでは Cu^{2+} の $spin = 1/2$ サイトが描かれている。この構造は、カゴメ格子の三角形 Δ, ∇ にさらに小さな三角目 \triangle, ∇ を入れ込んだ構造ともいえる。実際、これを実現した結晶として、 $Cu_9Cl_2(cpa)_6 \cdot xH_2O$ が合成され、その実験的研究が精力的に進められている。我々は、この系に対して Mekata 自身が提案した Heisenberg 模型に基づいてスピン波の計算を行って分散、量子効果によるエネルギーの低下などを調べている [4,5]。また、有限系厳密数値計算も実行している。さらには、有限温度でのスピン配行パターンの振舞いを知るため Monte Carlo 計算もすすめている。 [5,6]

2 スピン構造とスピン波計算

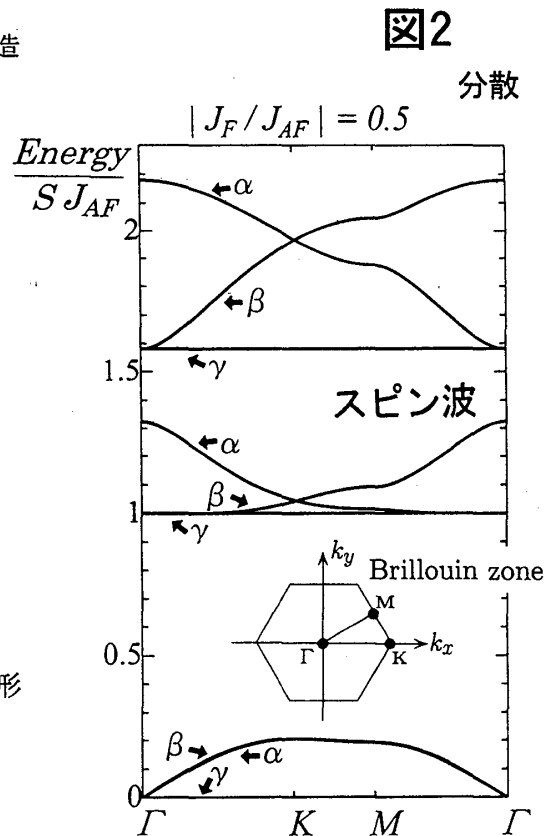
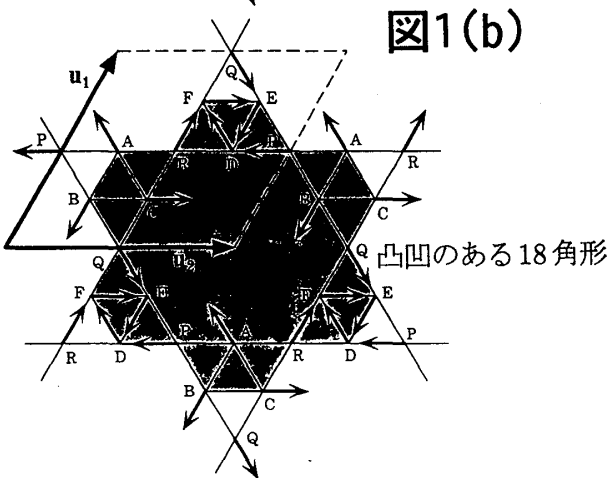
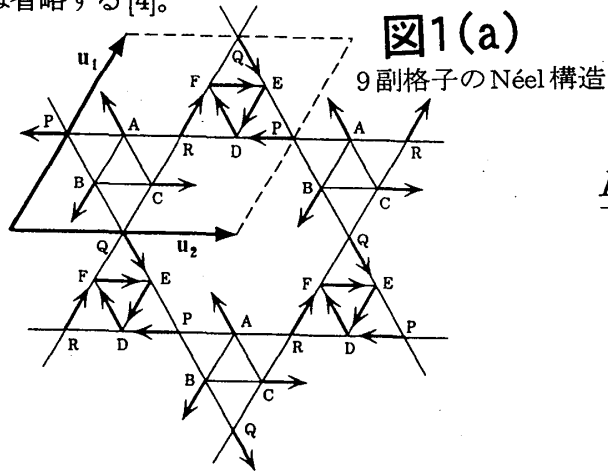
この図 1(a) の構造においては、実験的研究 [1-3] より、小さな三角形 $\triangle ABC$, $\triangle DEF$ の辺は反強磁性 Heisenberg 交換相互作用 J_{AF} で、元のカゴメ格子点 $\triangle PQR$ の頂点と $\triangle ABC$, $\triangle DEF$ の頂点の間は強磁性 Heisenberg 交換相互作用 J_F と予測されている。

¹E-mail: natsume@science.s.chiba-u.ac.jp

ここへ図1(a)の矢印で示した9副格子のNéel構造(提案はM.Mekata)を考える。これは9副格子構造である。反強磁性相互作用する小さな三角形内は120度構造であり、それらの各スピンの元のカゴメ格子点のスピンの間には、強磁性的相互作用のbondであることを考慮して60度の角度となっている。対応するBrillouin zoneは図2に入っている。Holstain-Primakoffの線形スピン波展開の方法を用い、分散の計算を行った。一般の波数の点においては運動方程式の方法も用いた[4]。結果として $|J_F/J_{AF}| = 0.5$ としたものを図2に示す。

2.1 分散のないモード

図2を見ると明らかなように、分散のないモード(γ)が3つ現れ、1つは励起エネルギー ω が0であるが、2つは有限の励起エネルギーを持つ。これは系の半局所的な対称性によって半局所的連続縮退を反映するモード(flat mode; $\omega = 0$)が現れるというカゴメ格子反強磁性体の特徴に加えて、三角形反強磁性体1つが3つのスピン波自由度を持つことによるflat modeの分裂が起きているともみなせる。この系での半局所的な対称性を調べると、図1(b)で示した凸凹のある18角形をなすloopに対応していて、全部で $N/9$ 個である。(Nは全スピン格子点数。)この半局所的な対称性の表現は我々によって初めて示された[4]。このスピン波分散に基づいて、基底エネルギーの量子効果による減少も計算した。この報告書では、それらおよび、有限系厳密対角化による数値計算の結果は省略する[4]。

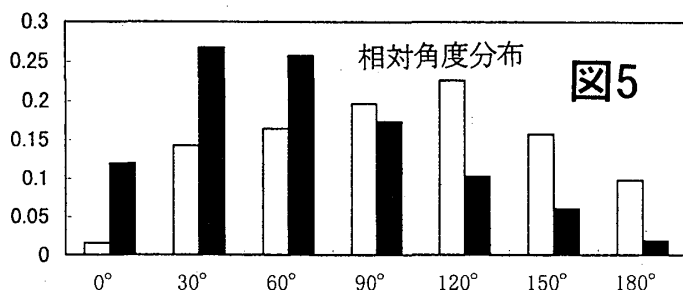
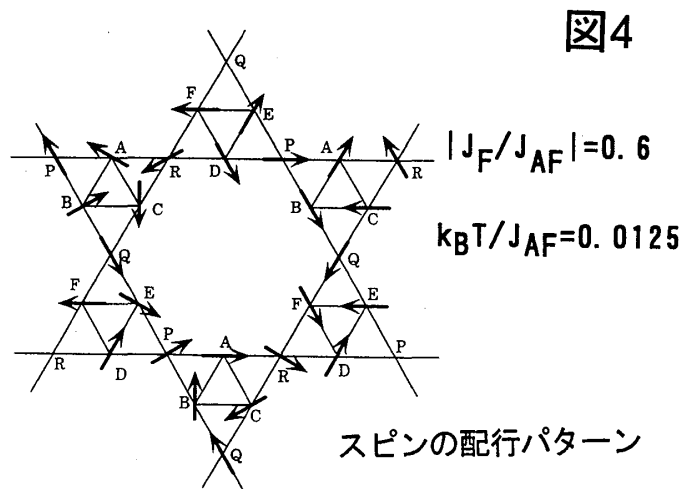
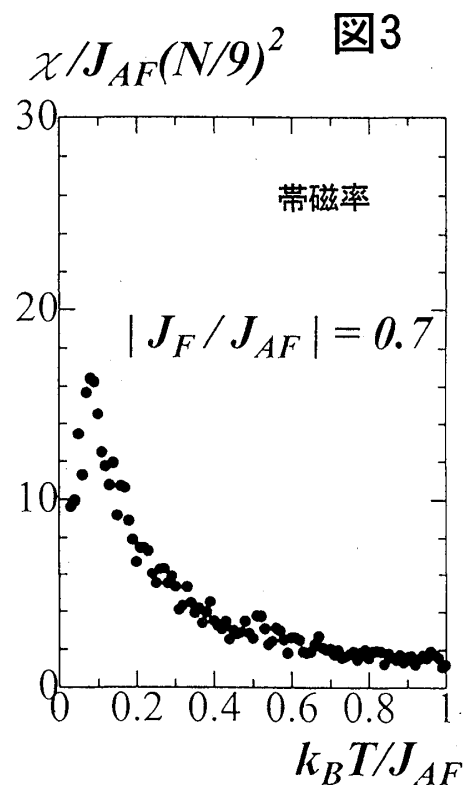


3 モンテカルロ計算

以上のスピン波展開法は図1(a)の9副格子のNéel構造を仮定しているが、低温におけるこの妥当性、この構造からのスピン配行のゆらぎによるパターン、スピン間の相関の振る舞い、帯磁率の温度変化などを調べるため、この系について古典スピン系のモンテカルロ計算をして、スピンの振る舞いを調べた。

3.1 帯磁率およびスピンの配行パターン

図3に帯磁率の温度に対する変化を示す。 $|J_F/J_{AF}| = 0.7$ とした。低温でpeakがみられる。このピーク付近以下のスピンの配向をsnapshotで見てそれを時間平均して調べたものを図4に示す。この図は $|J_F/J_{AF}| = 0.6$ である。上記のHeisenbergモデルの形がやはり、支配的であり、特に、三角目内の120度構造はかなり強固であることがわかった。しかし、そこからのゆらぎによって、強磁性ボンドの両側については互いに30度をなしているものもかなり多いことがわかった。ゆらぎの効果は実験結果を解析する上でも重要であると指摘されている[7]。そこで、スピン間の相対角度分布という量を求めたものが図5である。白棒は反強磁性bondの両側のスピンについての出現分布、黒棒は強磁性bondの両側についての分布である。これをみると、強磁性bondの両側は60度よりむしろ30度が多くなっていることがわかる。



4 今後の研究のすすめ方:報告書作成時の追記

このような複雑な9副格子系 **TRKGM** でスピン波計算が実行でき、それによる量子効果がわかったことは理論上、充分意義があるが、それに加えて、実験的研究も μSR などがすすめられている [7]。近い将来、実験結果と理論計算の比較による進展が期待される [7]。

また、強磁性 bond と反強磁性 bond が共存した9副格子構造というものは、決して特殊化された model ではないということも強調しておきたい。事実、極最近、現実には **hexagonal Laves phase compound** $ThMn_2$ の $6h$ 位置の Mn イオンについて報告されている [8] が、そこではカゴメ格子において小さな網目の三角形(下向き ∇) 内が強磁性的で、それらを結びつける(上向き Δ) bond が反強磁性的であることがわかった。9副格子スピン系問題は、ますます、奥の深い問題であり、同時に現実性のあるテーマである。

(さらなる先には27副格子 model も考えられる。このモデル図は、財布の中に入れて、時々ながめていますが、ここまでこの文を読んで下さった方にはお送りしますので連絡して下さい!)

謝辞

千葉大学自然科学研究科の鈴木敏彦博士、渡部裕一博士には計算方法の具体的指導をしていただいた。また、福井大学工学部の目方守先生、千葉大学理学部の中山隆史先生には貴重な議論をしていただきました。深く感謝します。

参考文献

- 1) M.Mekata, M.Abdulla, T.Asano, H.Kikuchi, T.Goto, T.Morishita and H.Hori, J. Mag. Mat. **177-178** (1998), 731.
- 2) S.Okubo, M.Hayashi, S.Kimura, H.Ohta, M.Motokawa, H.Kikuchi and H.Hasegawa, Physica **B246-247** (1998), 553.
- 3) S.Maruti and L.W.ter Haar, J.Appl.Phys. **75** (1994), 5949.
- 4) R.Natori, Y.Watabe and Y.Natsume, J.Phys.Soc.Jpn **66** (1997), 3687.
- 5) 名取亮、夏目雄平、物性研究、**Vol.71** (1998), 546 (1998年物性若手夏の学校ポスター).
- 6) R.Natori and Y.Natsume, Transactions of the Material Research Society of Japan, (1999), **24**, in press.
- 7) 目方守他, 日本物理学会講演および私信.
- 8) S.Giri, H.Nakamura and M.Shiga, Phys.Rev. **B59** (1999), 13943.