

パイロクロア構造を持つカゴメ格子反強磁性体の相転移

大阪大学 理学研究科 有森 拓也¹, 川村 光

1 はじめに

これまで $\text{SrCr}_9\text{pGa}_{12-9\text{p}}\text{O}_{19}$ (SCGO) は、カゴメ格子反強磁性体の典型例であると考えられてきた。しかし、低温帯磁率が磁場冷却 (FC) の場合とゼロ磁場冷却 (ZFC) の場合で異なり、非線形帯磁率が有限温度で発散的挙動を示すなどのスピングラス的な振る舞いを示す。これは、単純なカゴメ格子反強磁性体の理論的結果と異なる。この理論と実験の相違は何から生じているのだろうか？ まず、SCGO の結晶構造 (図 1) を見ると、磁性を担う Cr は 2 つのカゴメ格子面で三角格子面を挟んだ 3 層構造が基本となっており、1 層のカゴメ格子ではない。この構造は、Pyrochlore を層状に切り取ったものに相当するため、Pyrochlore slab と呼ばれる。

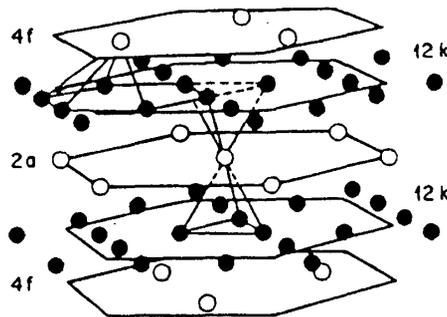


図 1: SCGO の結晶構造

2 モデル

我々は、SCGO の 3 層構造に注目し、Pyrochlore slab 上の反強磁性古典ハイゼンベルグモデルを考えた。具体的なハミルトニアンは次のものである。

$$\mathcal{H} = J_1 \sum_{\langle i,j \rangle}^{n.n.} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + J_2 \sum_{\langle k,l \rangle}^{n.n.n.} \mathbf{S}_k \cdot \mathbf{S}_l + J' \sum_{\langle m,n \rangle}^{inter} \mathbf{S}_m \cdot \mathbf{S}_n \quad (1)$$

¹ E-mail: arimori@spin.ess.sci.osaka-u.ac.jp

ここで、 J_1 はカゴメ面内の最近接反強磁性相互作用 ($J_1 > 0$)、 J_2 はカゴメ面内の次近接相互作用で、 J' は面間の反強磁性相互作用 ($J' > 0$) である。このモデルについて、その磁気秩序をモンテカルロシミュレーションを用いて調べた。

3 シミュレーション

様々な J_1/J_2 の値について行ったシミュレーションの結果について以下に示す。なお、実験的には面間の相互作用 J' はカゴメ面内の相互作用 J_1 に比べて弱いはずだが、今回はすべて $J_1 = J'$ とした。

3.1 $J_2 = 0$ の場合

まず、カゴメ面の最近接相互作用 J_1 のみの場合を考える。(面間は $J' = J_1$) この場合、単純なカゴメ格子の場合と異なるのは、 $T \rightarrow 0$ でスピンの平面構造を取らず、スカラーカイラリティ: $\chi_i = \mathbf{S}_i^A \cdot (\mathbf{S}_i^B \times \mathbf{S}_i^C)$ が、四面体構造の部分で残ることである。図2にスカラーカイラリティの local amplitude

$$\chi = \frac{1}{N_\Delta} \sum_i \chi_i^2 \quad (2)$$

を、単層のカゴメ格子 (a) と Pylochlore slab (b) について示した。ここで、 N_Δ は、カゴメ格子内の上向き三角の数である。

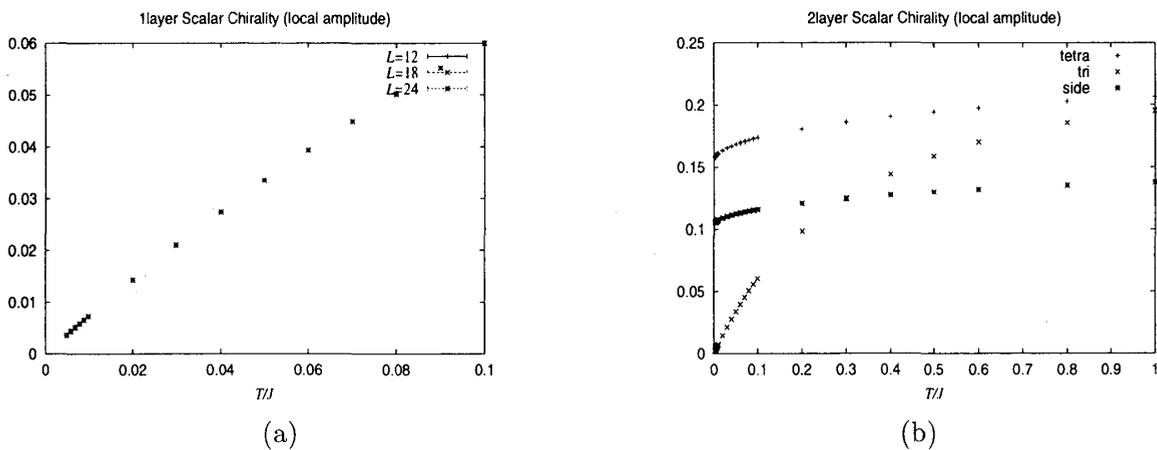


図 2: スカラーカイラリティの local amplitude

このように、四面体構造は系の性質を大きく変える。ただし、相互作用が J_1 のみの場合には、この近距離秩序として有限に残るスカラーカイラリティは、低温に至るまで長距離秩序を示さない。

3.2 $J_2/J_1 = -1$ の場合

次近接相互作用 J_2 を強磁性的に入れた場合を考える。実験的には、次近接相互作用は最近接に比べて非常に小さいはずであるが、ここでは、極端な例として、最近接と次近接の強さが等しい

場合の結果を示す。図3に、比熱を普通のカゴメ格子(a)と Pylochlore slab(b) について示した。

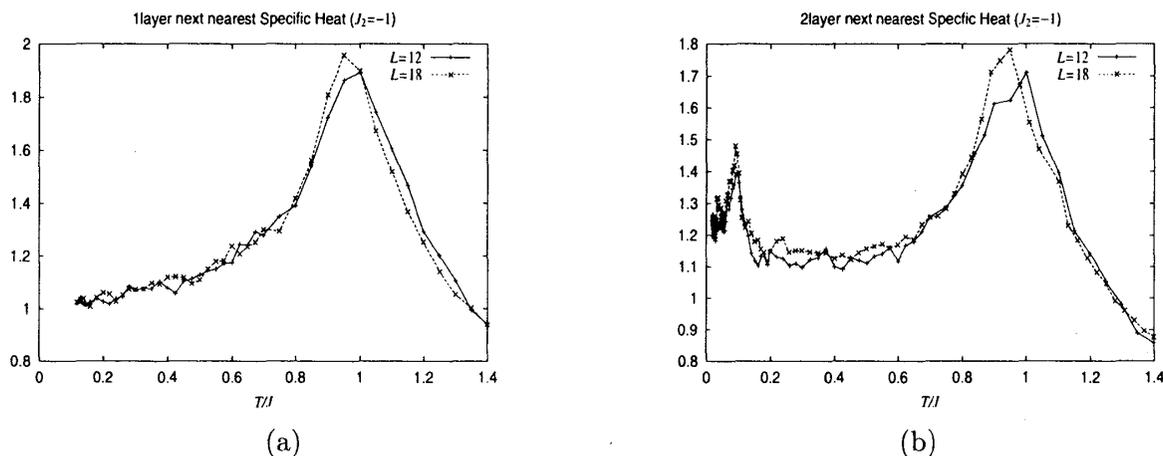


図 3: $J_2/J_1 = -1$ のときの比熱

カゴメ格子の場合にも見られる高温側のピークは、 $J_2 = 0$ におけるハイゼンベルグスピンの $q = 0$ 状態と $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 状態の縮退がとけ、 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 状態が、 $J_2 < 0$ のためエネルギー的に選ばれることによるものである。Pylochlore slab の場合にのみ見られる低温でのピークは、四面体の部分で有限に残ったスカラーカイラリティが、以下の温度で急激に減少し、スピンの平面構造をとることに伴うものである。図4に、Pylochlore slab の場合のスカラーカイラリティの local amplitude を示した。

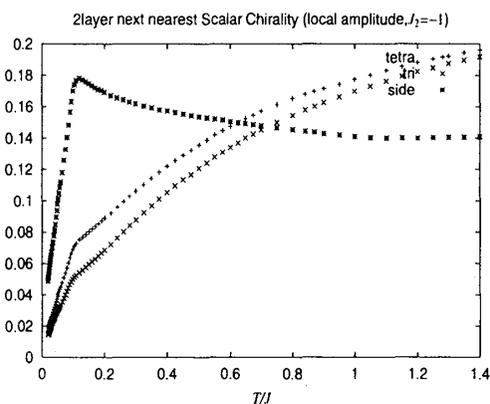


図 4: $J_2/J_1 = -1$ のときのスカラーカイラリティの local amplitude

このように次近接相互作用を強磁性的にした場合には、スピンは低温で単層のカゴメ格子と同様に平面構造を取ることが判った。

3.3 $J_2/J_1 = 0.5$ の場合

今度は、次近接相互作用が反強磁性的な場合を考える。このときも、次近接が強磁性的な場合と同様、比熱はカゴメ格子では1つ、Pylochlore slab では2つのピークを持つ。しかし、Pylochlore slab の低温側のピークが生じるメカニズムは次近接が強磁性的な場合と異なる。次近接が反強磁性的な場合には、局所的に有限に残ったスカラーカイラリティが、各四面体の底面が作る三角超格子上で1,-1,0という準長距離秩序を持った部分無秩序相に転移するために、低温で比熱にピークが見られる。図5に比熱とスカラーカイラリティの副格子オーダー

$$\langle M_F^2 \rangle = \frac{1}{N_{\Delta}^2} \{ (\sum_i \chi_i^A)^2 + (\sum_i \chi_i^B)^2 + (\sum_i \chi_i^C)^2 \} \quad (3)$$

を示す。また、臨界指数からこの転移がKT的な転移であることも確認した。

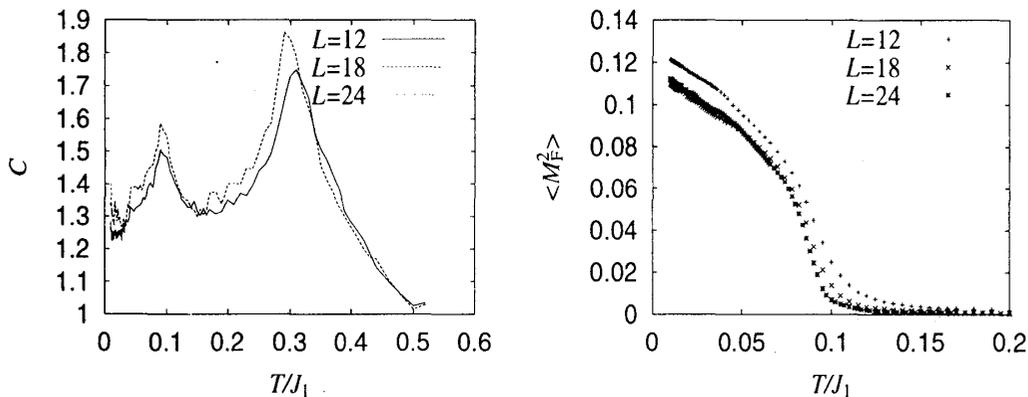


図5: $J_2/J_1 = 0.5$ の場合の比熱とスカラーカイラリティの副格子オーダー

4 まとめと今後

我々は、Pyrochlore slab 上の反強磁性古典ハイゼンベルグモデルの磁気秩序について、モンテカルロシミュレーションを用いて調べた。

まず、最近接相互作用のみの場合 ($J_2 = 0$) には、普通のカゴメ格子の場合と異なり、 $T \rightarrow 0$ でも四面体部分にスカラーカイラリティが残りスピンは平面構造を取らない。しかし、このスカラーカイラリティの長距離秩序は低温まで見られない。

次近接相互作用を強磁性的にした場合には、四面体部分のスカラーカイラリティが低温で急激に減少し、 $T \rightarrow 0$ でスピンは平面構造を取る。また、次近接相互作用を反強磁性にした場合には、スカラーカイラリティが部分無秩序的な準長距離秩序を示す状態へとKT的な相転移をする。

このように、Pylochlore slab 上の反強磁性体は、単層のカゴメ格子上の反強磁性体と大きく異なる振る舞いをする事がわかった。しかし、依然としてSCGOの実験でみられたスピングラス的な振る舞いを説明するには不十分である。今後は、ランダムネスの効果などを考慮して、実験的事実の説明を試みたい。