

積層三角格子反強磁性体の相転移

京大理 網代芳民、稲見俊哉、菊池彦光（現、名工試）

物性研 門脇広明（中性子）、後藤恒昭（強磁場磁化）

1. 三角格子反強磁性体CsMnBr₃、CsMnI₃における相転移

—— New Universality の検証実験 ——

三角格子反強磁性体（ Δ AF）は、規則格子において、しかも一種類の反強磁性相互作用のみでフラストレーションが生じる単純な系である。その秩序化過程について理論的、実験的に活発に研究されており、フラストレーション効果が新しい相転移や秩序相を生み出すことが明らかになりつつある。フラストレーションの結果、Ising系における部分無秩序、XY系におけるchirality秩序、Heisenberg系における Z_2 -vortex秩序、量子スピン系における共鳴原子価（RVB）状態などの出現が予見されており、実験的にも検証が部分的に行われつつある。

我々は従来からABX₃型化合物を対象に、フラストレート系の秩序化過程を追求してきた。六方晶ABX₃型化合物は、c軸方向に磁気鎖を持つ擬一次元磁性体である。磁気鎖がc面内で Δ AFを形成していることから、鎖間の反強磁性相互作用がフラストレーションを生む。擬一次元性のきわめて強いこの Δ AF系の秩序化現象がいかに特異的なものであるかについて、これまでの研究を通じて明らかにしてきたが、今回は New Universalityを持つ相転移の検証を目的にして、CsMnBr₃とCsMnI₃における中性子回折実験の結果^{1), 2)}について報告した。

一般的な観点からは、各二次相転移は秩序パラメータの対称性および空間次元によって決まる Universality Class に分類され、各classは特定の臨界指数で特徴づけることが出来る。川村³⁾は、XYあるいはHeisenbergスピン対称性を持つ積層 Δ AFの相転移に関する考察を行った。2次元XY Δ AFにおいてはLR0は起きずchiralityの秩序のみが期待されることから、積層XY Δ AFの転移の性格を調べることは大変興味ある問題である。理論的考察によれば、この系の相転移の性格はXYスピン自身の持つ対称性 S_1 とフラストレーションの結果生じたchiralityのもつ対称性 Z_2 との積からなる $Z_2 \times S_1$ 対称性に支配される。この新しい Universality class を特徴

づける一連の各種臨界指数の値が求められている。

CsMnBr₃は弱いXY性を含むHeisenbergスピン系として特徴づけることが出来る擬1次元系で、鎖内AF相互作用は鎖間AF相互作用の約500倍強い。低温においては1次元のAF短距離秩序が発達しXY異方性のためにスピンはc面内に制約されるようになる。これらXY磁気鎖がc面内で Δ AFを形成し、 $T_N=8.4\text{K}$ 以下において鎖間AF相互作用のフラストレーションによっていわゆるc面内 120° 構造の秩序化したスピン構造をとる。したがって見方を変えれば、CsMnBr₃は積層XY Δ AFの擬1次元版であると考えることが出来る。すなわち、鎖間相互作用で形成された二次元 Δ AFがc軸方向の強い鎖内相互作用によって積層されている。この事情によって、上に述べた川村理論の検証が可能なモデル物質とみなすことが出来る。

中性子回折実験の結果、自発磁化の指数 $\beta=0.25\pm0.01$ 、スタガード帯磁率の指数 $\gamma=1.10\pm0.05$ 、逆相関距離の指数 $\nu=0.57\pm0.03$ が得られた。これら臨界指数を種々の系の臨界指数と比較すれば、積層XY Δ AFの値と非常によい一致を示している。新しいUniversalityを検証したものであることが出来るが、更なる確証をCsMnI₃の結果から得ることが出来た。

CsMnI₃は、CsMnBr₃と磁気的パラメータは非常に似ているけれども異方性だけがXY型からIsing型に変化した系である。したがってこの2つの系の比較から、CsMnBr₃の臨界指数が真に積層XY Δ AFに由来したものであることを確証できると考えた。

CsMnI₃においてはIsing型 Δ AF系に特徴的な逐次相転移が $T_{N1}=11.2\text{K}$ 、 $T_{N2}=8.2\text{K}$ において観測された。 $T_{N1}>T>T_{N2}$ の中間相ではスピンのc軸平行成分秩序、 $T_{N2}>T$ においてはc軸垂直成分秩序が生じる。スピンの各方向成分に関する臨界指数 β は $\beta_{\parallel}=0.32\pm0.02$ 、 $\beta_{\perp}=0.30\pm0.03$ であることが判明した。他の臨界指数 γ や ν の決定は今後の課題であるが、決定された β は通常の3D-Isingの値ときわめて近い。この事実からCsMnBr₃における相転移がXY異方性に由来したNew Universalityに属することを更に確証した。

CsMnBr₃における相転移の性格は上述のように決定されたのであるが、その秩序化状態は十分に解明されていない。非常に大きな揺らぎが観測されるのである。擬1次元に由来すると考えているが今後の実験によって明らかにされると期待している。

1) H.Kadowaki, S.M.Shapiro, T.Inami, Y.Ajio,

J.Phys.Soc.Jpn. 57 (1988) 2640

2) Y.Ajio, T.Nakashima, Y.Unno, H.Kadowaki, M.Mekata, N.Achiwa,

J.Phys.Soc.Jpn. 57 (1988) 2648

3) H.Kawamura, J.Phys.Soc.Jpn. 55 (1986) 2095

2. Δ AFの new model systems

理想的な二次元 Δ AFモデル物質系の探索に関して現況を報告した。

(1) ACrO_2

二次元層状三角格子系として 平川によって注目されている LiNiO_2 , NaTiO_2 と同型の類似物質である。 HCrO_2 、 LiCrO_2 、 CuCrO_2 など、 Cr^{3+} ($S=3/2$) 化合物について、古典スピンHeisenberg Δ AFに特徴的な Z_2 -vortex励起によるESR線幅の温度変化⁴⁾、中性子散乱による二次元短距離秩序の直接観察⁵⁾ などについて報告した。

4) Y.Ajiro et al, J.Phys.Soc.Jpn. 57 (1988) 2268

5) H.Kadowaki, H.Kikuchi, Y.Ajiro, J.Phys. Cond.Matter to be published

(2) $\text{AFe}(\text{XO}_4)_2$

新しいモデル物質群として $\text{AM}(\text{XO}_4)_2$ 型化合物に注目し、磁化率、高磁場磁化を測定し、三角格子系特有の $1/3$ ブラトーを示す磁化過程の観測と飽和磁場の観測、磁化率の温度変化から物質パラメータを決定した。

(3) グラファイト上の吸着酸素分子

本研究会においても、東大グループ(村上、寿栄松)による詳細な研究が報告された。制御された分子層数に対する磁氣的挙動の変化について、東大グループと共同で磁気共鳴の研究を開始し、予備的な結果を得ている。

(4) グラファイト層間挿入化合物(GIC)

本研究会の主題の一つであるGIC磁性に関連して、 Δ AFとして優れた特性を示す物質(例えば平川による VCl_2 、 VBr_2 など)を層間に挿入することを提案した。他の物質系を含めて、技術的な検討を試みる価値がある。