

B2. 古典かごめ格子反強磁性体の相転移

平成 7 年 5 月 22 日 (月)

京都大学 人間環境学研究科

博士過程 1 年 黒田 明義*

1 はじめに

籠目格子とは、三角形と六角形を組合わせた格子であり、その反強磁性体は、極端にフラストレートした系として知られている。よって、Heisenberg spin では基底状態が 120° 構造を取るが、そのフラストレーションは六角形の部分で、捻れの自由度を持つことになり連続無限に縮退している。その縮退は古典系でも熱揺らぎに伴うエントロピー効果で解け、スピンは平面上にそろい、これは Hidden Order または Order from disorder と呼ばれている。平面状態の中にも様々な状態が考えられ、中でも $\vec{q} = \vec{0}$ 構造及び、 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 構造の 2 つの状態が良く調べられてきており、どちらの状態が安定かが問題になっている。現在、様々な研究により $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 構造の安定性が指摘され、それが信じられている。

これらの構造は Heisenberg model で、2 つの平面状態がお互いに風見鳥変換と呼ばれる変換で、エネルギーの障壁を感じずに変換することが出来る。[Fig.1]

籠目格子上のスピン系を記述する実験データとしては、層状のグラファイト結晶上にのった ^3He , $\text{SrCr}_{8-x}\text{Ga}_{4+x}\text{O}_{19}$, $\text{MFe}_3(\text{OH})_6(\text{SO}_4)_2$ などの化合物が知られており、比熱や帯磁率の異常など様々な特異性が見い出されている。これらの物質は層状化合物で層間相互作用し、また純粹な Heisenberg model で記述できるとは限らない。今回我々は、基底状態が連続無限に縮退し、フラストレーションを持つという興味深い性質を持つ系である 2 次元籠目格子に注目して、その系の性質について研究を行い、更に、様々なパラメータを変えることにより、実際の物質の性質との比較も行なった。

2 手法およびモデル

我々は籠目格子上のスピン系に対して、最隣接反強磁性相互作用のみを考え、以下のハミルトニアンに対し解析を行った。つまり、

$$\mathcal{H} = \sum_{\langle i,j \rangle} (S_i^x \cdot S_j^x + S_i^y \cdot S_j^y + A \cdot S_i^z \cdot S_j^z) \quad (1)$$

A は異方性をあらわす。我々はこの Hamiltonian に対し、熱浴法を用いた古典 Monte Carlo simulation を用いて解析を行った。但し、一般の Monte Carlo simulation では籠目格子に特徴的な温度領域で作動しないので、極低温の simulation にも耐え得る様な工夫を施している。又、この結果に対して、調和振動子近似を行った解析を行い、simulation との対応を調べた。更に、風見鳥変換フリップに相当する、cluster flip を用いた Monte Carlo simulation を行い、基底状態の安定な配位について考察を行った。

*e-mail:kro@yukawa.kyoto-u.ac.jp

3 比熱および平面性

まず、Monte Carlo simulation による、比熱の温度依存性を調べた。まとめると、

1. 鋭いピークが存在しない。[Fig.2]
2. 2つのわずかなピークが存在。[Table.1]
3. $C_{T \rightarrow 0}/J = (11/12 - 1/N) k_B$. [Fig.2]

これはねじれの自由度のモードの分、比熱の値が1より小さくなっているものである。これが起こるためには sublattice 構造をとっている必要があり、極低温での平面構造を示唆している。2項目は全体の自由回転による、サイズ依存性を示す。 $T=0$ で、有限サイズの効果も含めて、完全に再現しているのが分かる。

4. 加熱により、 $\vec{q} = \vec{0}$ 構造の方に飛びが出現。[Fig.2]

この温度で平面性も急に落ちている。このことから、 $\vec{q} = \vec{0}$ 構造の不安定性が指摘されてきた。しかしこれは、 $\vec{q} = \vec{0}$ 構造からの風見鳥変換に $\sim \sqrt{N}$ のスピンの必要で、変換が起こりにくい事に起因する。つまり、flip の方法次第で、消せる飛びであり、これだけではどちらの構造が安定かは確定できない。

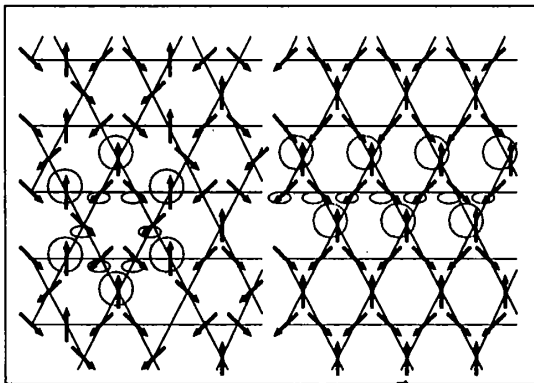


Fig.1 風見鳥変換の図。右が $\vec{q} = \vec{0}$ 構造。左が $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 構造。○のスピンを固定しながら囲まれるスピンを回転させることで、エネルギーの障壁なしにお互い変換することができる。

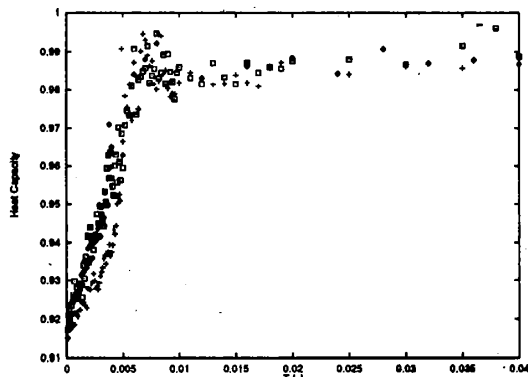


Fig.2 Monte Carlo simulation による比熱の温度依存性。飛びのあるものは $\vec{q} = \vec{0}$ 構造からの加熱である。

我々はこの比熱の振舞いが本当にスピンの平面化によるものかを確認するために、平面度をあらわすパラメータを導入し、その温度依存性も調べた。この平面度の温度依存性を見ると、比熱が $\frac{11}{12} k_B$ に落ち込む極低温で、スピンの急激に平面に揃ってきているのが分かる。[Fig.3] 平面性については、調和振動子近似によって、その安定性を解析することができる。この安定性は少なくとも2次の展開の範囲で、隣接5スピンに関して見ている限り2つの平面状態は同等に安定であることが示せる。つまり、一般によく言われるような $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 構造の安定性に関して、局所的には何も肯定的なものが得られてないことがいえる。

4 スピン配位および基底状態

我々は Monte Carlo simulation によって獲られた安定配位が如何なる配位かを知るために、籠目格子上の反強磁性 3-state Potts との比較を行った。手法としては、風見鳥変換 Monte Carlo

method とでも呼ぶべき方法を用いた。つまり、風見鳥変換に相当する経路を random に見つけて、フリップさせる方法である。これにより、籠目格子上の反強磁性 3-state Potts を実現することができこの方法による第 2 隣接スピン相関を Monte Carlo simulation と比較した。その結果、

1. 平面構造をとる。

これは調和振動子近似を用いエントロピー効果で説明出来る。

2. 局所状態は $\sqrt{3} \times \sqrt{3} : \bar{q} = \bar{0} = 2:1$ で混合。

これは風見鳥変換フリップをさせたときの第 2 隣接相関の値が約 0.51 であることによる。

3. これは $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ と $\bar{q} = \bar{0}$ をランダムに配置した状態に相当。[Fig.4]

これは風見鳥変換を用いた 3-state Potts に対応する cluster flip との比較で確認された。

initial state	size	0.0060	0.0070	0.0080	0.0120	size	$\bar{q} = \bar{0}$	$\sqrt{3} \times \sqrt{3}$
random	675	0.9929	0.9918	0.9880	—	27	—	0.7001 ± 0.0015
$\bar{q} = \bar{0}$	675	0.9929	0.9919	0.9901	—	108	0.5075 ± 0.0028	0.5090 ± 0.0059
$\sqrt{3} \times \sqrt{3}$	675	0.9927	0.9920	0.9881	—	243	—	0.5090 ± 0.0028
random	432	—	0.9920	0.9913	0.9867	432	0.5112 ± 0.0048	0.5115 ± 0.0050
random	243	—	—	0.9938	0.9895	675	—	0.5134 ± 0.0038

Table.1 Monte Carlo simulation による比熱のピークの有無。様々な初期状態について長時間 ($2.5 \times 10^7 MCS$) simulate し、比較を行なった。 $T/J \sim 0.006$ で、比熱にわずかなピークが存在することが分かる。

Table.2 風見鳥フリップによる、Monte Carlo simulation による、第 2 隣接相関の値。— は風見鳥変換だけでは十分移り変わらない初期配位。

ちなみに様々な物理量において、 $N = 27$ の格子のみかなり特殊な振舞いをしている傾向が見られる。しかし、これは格子サイズが小さいため、平面構造でのエルゴート性が保たれず、ある状態内で凍結されていることによるものと解釈できる。

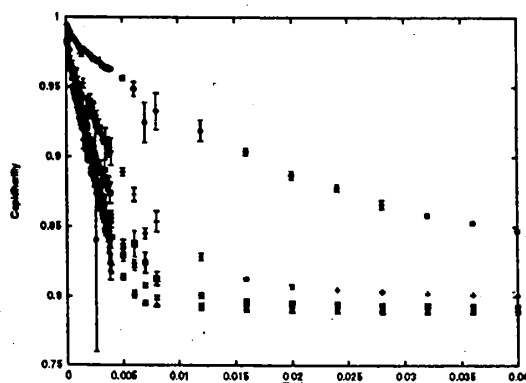


Fig.3 Monte Carlo simulation による平面性の温度依存性。サイズ効果を見ている。 $N = 27, 108, 243, 432, 675$

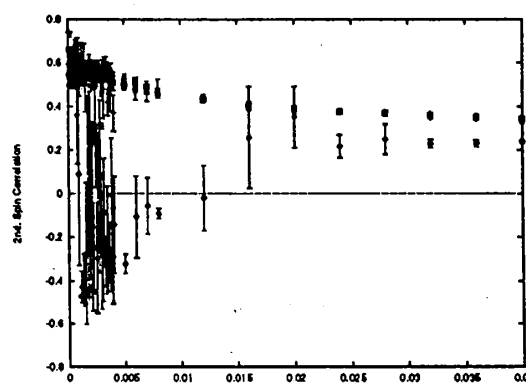


Fig.4 Monte Carlo simulation による第 2 隣接相関の温度依存性。サイズ効果を見ている。異常な振舞いをするのは $N = 27$ の格子

5 他の物理量および議論

Heisenberg model の性質との対比および、実験との比較のため異方性の効果も調べた。

1. XY like model では平面化に伴う比熱にカスプ状ピークの存在。[Fig.5]
これは、Heisenberg model の秩序化と同様の平面化によるピーク。但し、エネルギーの効果が加わるため、かなり性質が異なる。
2. Ising like model では容易軸方向への秩序化に伴う比熱及び帯磁率のピーク。[Fig.6]
これは、Ising like Heisenberg 三角格子反強磁性体と同様に、Z 成分に磁化があらわれる転移である。Ising spin では、完全に常磁性であることが知られており、非自明なピーク。

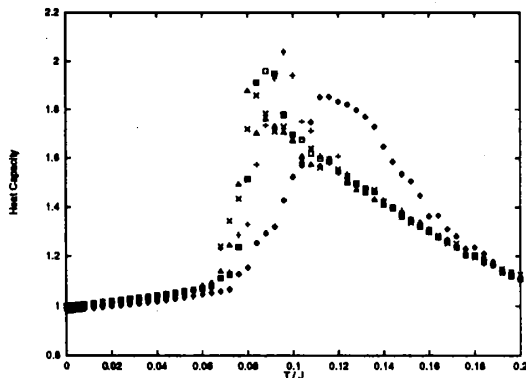


Fig.5 XY like Heisenberg model の比熱の温度依存性サイズ効果を見ている

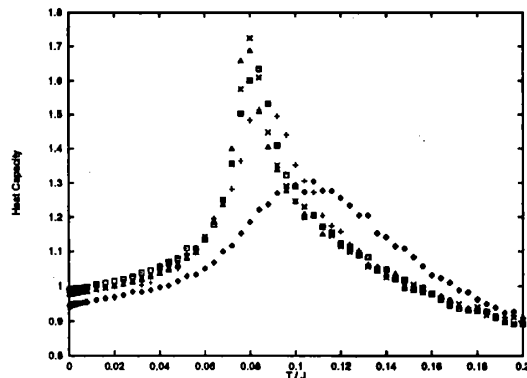


Fig.6 Ising like Heisenberg model の比熱の温度依存性。

更に実験との比較のため、Ising like Heisenberg モデルの配位や、層状籠目格子の性質についても調べた。Ising like Heisenberg model では、様々な大きさのクラスター構造が見られ、磁気緩和過程の non-exponential 的振舞いとの関係が考えられる。層状効果は、異方性の効果に関しては大きな相違点は見られず、層間相互作用がある程度以上強くても、2次元籠目格子の性質で説明可能であることが予想できる。しかし、純粋な Heisenberg model の場合は別で、平面化の秩序化が層間の秩序化と連動して生じ、有限温度で鋭いピークが観測できるようになった。

6 謝辞

この研究をするに際しに様々な人にお世話になりました。宮下精二教授、吉野太郎氏を始めとして、富田博之教授、川崎辰夫教授、武末真二助教授、斉藤圭二氏、路次美紀子氏の物性理論グループの皆様、および摂南大学の渡会征三助教授からは様々な議論や示唆を頂きころから感謝しています。また数値計算は主に HP9000 シリーズで行なった。

参考文献

- [1] A.P.Ramirez : J. Appl. Phys. 70-10 (1991) 5952-5955
- [2] J.T.Chalker, P.C.W.Holdsworth, E.F.Shender : Phys. Rev. Lett. 68-6 (1992) 855-858
- [3] D.A.Huse, A.D.Rutenberg : Phys. Rev. B 45-13 (1992) 7536-7539
- [4] J.N.Reimers, A.J.Berlinsky : Phys. Rev. B 48-13 (1993) 9539-9554
- [5] H.Asakawa : Bussei Kenkyu (Kyoto) 63-1 (1994) 50-81