

福岡工業大学 機関リポジトリ

FITREPO

Title	一軸方向に歪んだパイロクロア型磁性体の基底状態 —第二近接相互作用の効果—
Author(s)	加藤 友彦
Citation	福岡工業大学研究論集 第43巻第1号 P5-P9
Issue Date	2010-9
URI	http://hdl.handle.net/11478/1085
Right	
Type	Departmental Bulletin Paper
Textversion	Publisher

Fukuoka Institute of Technology

一軸方向に歪んだパイロクロア型磁性体の基底状態 — 第二近接相互作用の効果 —

北 崎 保 (物質生産システム工学専攻)
古 賀 陽 介 (電子情報工学専攻)
加 藤 友 彦 (物質生産システム工学専攻)

Ground States of a Magnet with Pyrochlore Structure Distorted in One Axis Direction - Effect of Second Neighbor Interaction -

Tamotsu KITAZAKI (Department of Material Science and Production Engineering)

Yosuke KOGA (Department of Information Electronics)

Tomohiko KATO (Department of Material Science and Production Engineering)

Abstract

Ground states of $\text{Co}_2\text{Cl}(\text{OH})_3$ are investigated. This compound is a magnet with pyrochlore structure distorted in one axis direction. The magnetic structure at low temperature is coexistence of ferromagnetism and random spin, which was reported by experiments. However, the detailed mechanism and the interaction of the magnetic structure are not clarified. Then, we assumed an anisotropic Ising model, and examined the ground state by multicanonical Monte Carlo simulation. As the result, there are overwhelmingly many spin glass states, and main ground states are spin glass aspects. At the same time, there are only a few ferromagnetic states. The latter magnetic states are ferromagnetic at triangular layers and 2in lout random state at Kagome layers. It is expected that the states correspond to the states reported by the experiments and are stabilized if weak ferromagnetic interactions exist between second nearest neighbor spins. This expectation is confirmed by the simulation.

Key words: *geometrical frustration, pyrochlore structure, Ising model, multicanonical Monte Carlo simulation*

1. 序論

幾何学的フラストレーションを持つ四面体格子の物質として、希土類化合物パイロクロア ($\text{Ho}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$, $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$) がよく知られている^{1,2)}。遷移金属化合物 $\text{Co}_2\text{Cl}(\text{OH})_3$ はこれらとよく似た構造を持っており、この磁気構造については、X.G.Zheng 等³⁾が帯磁率、 μSR の測定を行い、低温の磁気構造は強磁性とランダムスピンの共存であると報告している。その後、H.Kubo 等⁴⁾及び Zenmyo 等⁵⁾が NMR の実験ならびに解析を行い、ほぼ同様の結果を得ている。しかしながら、このような特異な磁気構造が実現する相互作用の機構は明らかになっていない。そこで、この物質を異方的イジングスピンモデルによって表現し、交換相互作用を適当に設定し、モンテカルロシミュレーションを用いて計算

することにより、基底状態の磁気構造を調べ、上記の磁気構造が可能かどうかを検討した。

2. モデルとモンテカルロシミュレーションの方法

2.1 一軸方向に歪んだパイロクロア型磁性体の磁気構造

本研究では、一軸方向に歪んだパイロクロア構造を持つ磁性体を対象としている。その結晶構造は図1のようになっている。 α は三角格子を構成するので三角層、 β はカゴメ格子を構成するのでカゴメ層と呼ばれる。三角層とカゴメ層の間のボンドは、カゴメ層内のボンドに比べて0.9倍程度に縮んでいる。

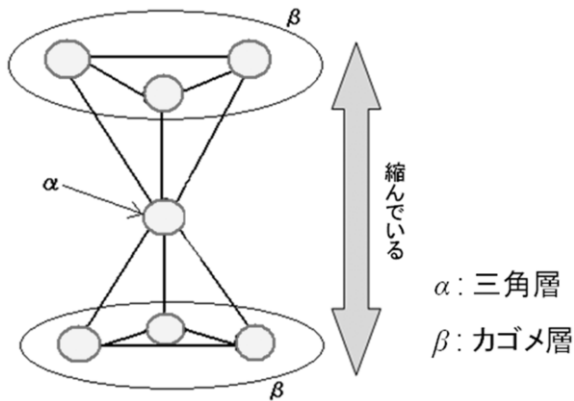


図1 パイロクロア磁性体の結晶構造

2.2 異方的イジングモデル

一軸方向に歪んだパイロクロア型磁性体のモデルとして、四面体の重心方向にスピンの向いた異方的イジングモデルを設定した。モデルハミルトニアン H は

$$H = - \sum_{\langle i,j \rangle} J_{ij} (\mathbf{n}_{p(i)} S_i) \cdot (\mathbf{n}_{p(j)} S_j) - h \sum_i n_{z,p(i)}^2 S_i$$

となる。 S はスピンの向きを表し ± 1 をとるものとする。 J は交換相互作用、 n は4方向の方向余弦、 h は外部磁場である。和は格子間の対についてとるものとする。 J は三角層とカゴメ層の間が縮んでいるため、カゴメ層内の相互作用よりも、カゴメ層と三角層の間の相互作用の方が強いと考えられる。カゴメ層内の相互作用を J_1 、三角層とカゴメ層の間の相互作用を J_2 とし、 $J_2 > J_1 > 0$ とした。また、第二近接交換相互作用として、カゴメ層とカゴメ層の間、三角層と三角層の間の相互作用 $J_3 > 0$ を考慮する。 J_3 は J_1, J_2 に比べ、かなり小さいと考えられる。今回は、

モデル<1> $J_1=1.0, J_2=1.2, J_3=0$

モデル<2> $J_1=1.0, J_2=1.2, J_3=0.05$

を計算の対象とした。

4方向の方向余弦については、

$$n_1 = \left(\frac{\sqrt{6}}{3}, \frac{\sqrt{2}}{3}, \frac{1}{3} \right), n_2 = \left(-\frac{\sqrt{6}}{3}, \frac{\sqrt{2}}{3}, \frac{1}{3} \right),$$

$$n_3 = \left(0, -\frac{2\sqrt{2}}{3}, \frac{1}{3} \right), n_4 = (0, 0, 1)$$

とする。これは正四面体の各頂点から重心に向かう方向余弦であり、歪んだ構造に対応したものではないが、 n_1, n_2, n_3 の z 成分の変位はハミルトニアンの中で n と積になっている J_2 の値に線りこんでいるとしている。

また、シミュレーションには図2の形状の格子を設定し、周期的境界条件を仮定した。

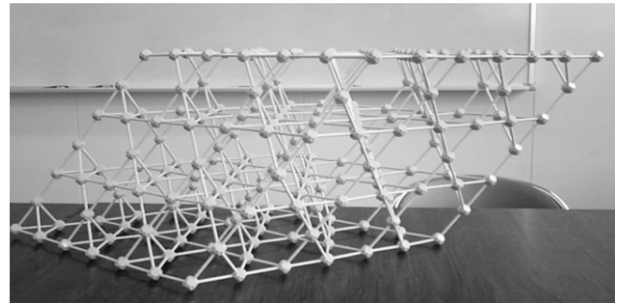


図2 シミュレーションで設定した格子の形状

2.3 マルチカノニカルモンテカルロシミュレーション

一軸方向に歪んだパイロクロア型磁性体の基底状態の探索のために用いた。マルチカノニカルモンテカルロ法⁶⁾は、通常のモンテカルロ法と異なり、系のどのエネルギー状態に対しても同じ重み(マルチカノニカル分布)で状態を実現させる方法である。エネルギー障壁を乗り越えて、一つの極小値に留まることを避けることができる。ある特定の温度 T^* を設定し、エネルギー E についての実現確率がどのエネルギー状態でも等しくなるように調整因子 $f(E)$ を導入し、新しい確率関数 $P_{Mu}(T^*, E)$ を定義する。

$$P_B(T^*, E) = \exp\left(-\frac{E}{k_B T^*}\right) D(E)$$

$$P_{Mu}(T^*, E) = P_B(T^*, E) \times \exp(-f(E)) = const.$$

これより

$$f(E) = const. + \log\left[\exp\left(-\frac{E}{k_B T^*}\right) D(E)\right]$$

あらかじめ $D(E)$ が分かっている場合には容易に $f(E)$ を求めることができるが、ほとんどの場合 $D(E)$ を求めることは簡単ではないため、 $f(E)$ はシミュレーションの過程で逐次的に求める。以下にその手順を記す。

第一段階として、特定の温度 T^* を設定し、メトロポリス法によって $P_B(T, E)$ を求め、それから f_1 を求める。

$$f_1(E) = const. + \log[P_B(T^*, E)]$$

第二段階として、第一段階のメトロポリス法におけるボルツマン因子 $P_B(T^*, E)$ の代わりに、仮想的なボルツマン因子 $W_{Mu}(E)$

$$W_{Mu}(E) = \exp\left[-\frac{E}{k_B T^*} - f_1(E)\right]$$

を用いてシミュレーションを行う。これにより得られた $P_1(T^*, E)$ より

$$f_2(E) = \log[P_1(T^*, E)]$$

を求める。

第三段階として、第二段階における $f_1(E)$ の代わりに $f_1(E) + f_2(E)$ を用いて同様のことを行う。

以上のことを実現度数が求める範囲でほぼ一定となるまで繰り返す。

図3は今回の計算で求めた実現度数のヒストグラムである。モデル<1>の場合において、様々な基底状態を実現するために、最低エネルギーである左端から適当に離れたエネルギー状態間を行き来する程度の実現度数を選択した。

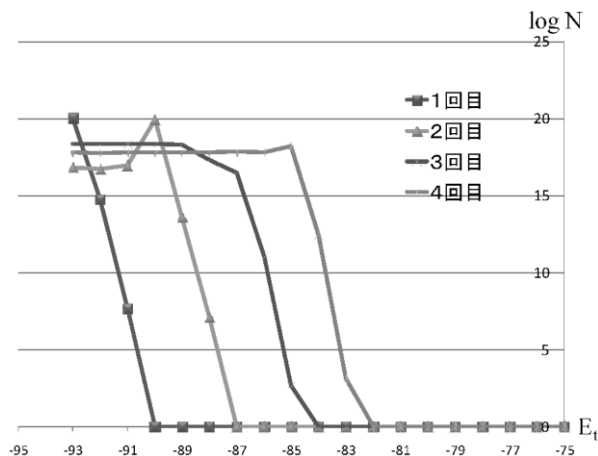


図3 磁性原子数256個の実現度数のヒストグラム
横軸はトータルエネルギー
縦軸はそのエネルギーの実現度数の対数

3. 計算結果

3.1 基底状態

モデル<1>の基底状態をマルチカノニカルモンテカルロシミュレーションを用いて求め、磁化の値別に分類した。表1は磁性原子数32(三角層：4×2，カゴメ層：12×2)の場合の基底状態の種類であり、2970種類を検出することができた。

表1 磁性原子数32の基底状態の種類

ΣS_1 三角層 8サイト	ΣS_1 カゴメ層 24サイト	M_z 32サイト	実現した 状態数
-8	-8	-10.666...	81
-4	-4	-5.333...	732
0	0	0	1344
4	4	5.333	732
8	8	10.666...	81

この場合の強磁性的基底状態の一例は図4のようになっている。

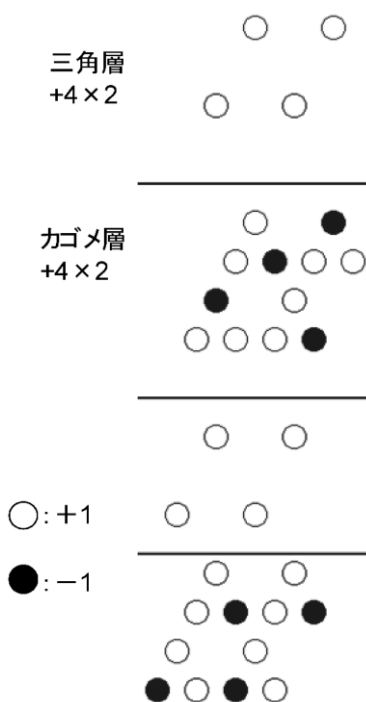


図4 磁性原子数32の強磁性的基底状態の例

三角層においては全て同じ向きである。カゴメ層においては、三角層と同じ向きのものが2つ、逆向きのものが1つあり、少数の方のスピント士が隣接しないように、規則的に配列している。これは磁性原子数を増やしても変わらない。磁性原子数32個の強磁性的な状態における1層のカゴメ層の形は図5の9種類がある。9種類が二層で独立して決まるので、 $9^2=81$ 種類の強磁性的基底状態が、±でそれぞれ存在する。今回の計算においては、この全種類を検出することができた。

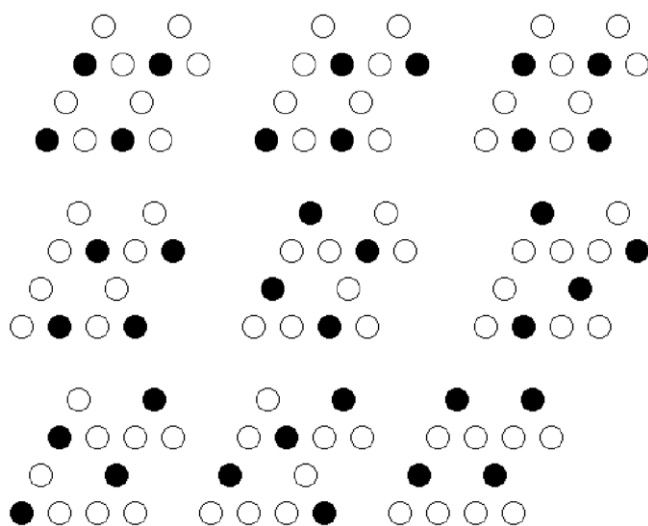


図5 磁性原子数32の強磁性的基底状態でカゴメ層が取り得る配置

表2は磁性原子数256(三角層:16×4, カゴメ層:48×4)の場合の基底状態の種類である。10⁹モンテカルロステップ行った結果, 513630種類の基底状態が得られた。

表2 磁性原子数256で実現した基底状態の種類

ΣS_i 三角層 64サイト	ΣS_i カゴメ層 192サイト	M_z 256サイト	実現した 状態数
-64	-64	-85.333...	0
-56	-56	-74.666...	0
-48	-48	-64	1
-40	-40	-53.333...	25
-32	-32	-42.666...	729
-24	-24	-32	8277
-16	-16	-21.333...	45031
-8	-8	-10.666...	119805
±0	±0	±0	165689
8	8	10.666...	120313
16	16	21.333...	44713
24	24	32	8288
32	32	42.666...	736
40	40	53.333...	22
48	48	64	1
56	56	74.666...	0
64	64	85.333...	0

トータルスピンの0となるスピングラス的な基底状態が最も多く現れ, それから離れるほどに少なくなっている。最も強磁性である場合は(129)⁴×2種類存在するはずであるが, 10⁹MCSでは検出されなかった。

z方向に磁場をかけるか, J₃>0を考慮とすることによって, 1層おきの強磁性状態のみが基底状態となるはずである。

3.2 オーダーパラメータの温度変化

図6はモデル<1>の場合のモンテカルロシミュレーションの結果である。SGOはスピングラスオーダーパラメータであり, ここではスピンの凍結の度合いを表している。

$$SGO = (1/N) \sum | \langle S_i \rangle |$$

M_zはz方向の磁化である。

$$M_z = (1/N) \sum \langle S_i \rangle n_{p(i)}$$

SGOは低温で1になっているため, スピンがいずれかの方向に凍結していると言える。一方, z方向の磁化はほとんど打ち消しあっている。よって, この場合は低温でスピングラスであると言える。

図7はモデル<2>の場合のシミュレーションの結果である。SGOは低温で1となっており, スピンはいずれかの

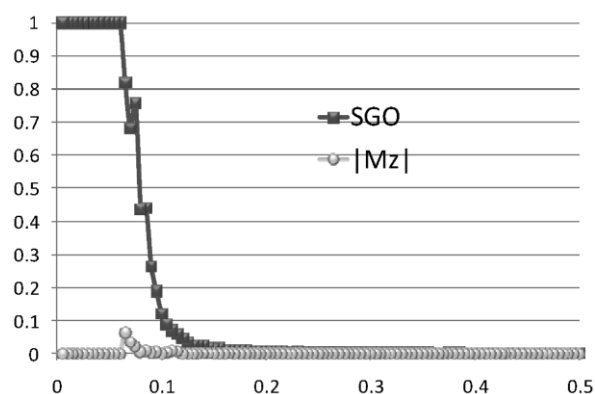


図6 第一近接格子相互作用のみの結果
縦軸はSGOと|Mz|
横軸は温度T/J

方向に凍結している。M_zは磁気モーメントが表れている。図8は磁気モーメントの内訳であり, スピン1個あたりの磁化を表している。これをみると, 三角層では1に, カゴメ層では1/9となっている。カゴメ層のスピンは, z方向に対して1/3の大きさになる方向を向いているため, 2つが同じ向きで1つが反対を向いていることを示している。よって, 三角層では強磁性的に, カゴメ層では不規則になっていると言える。

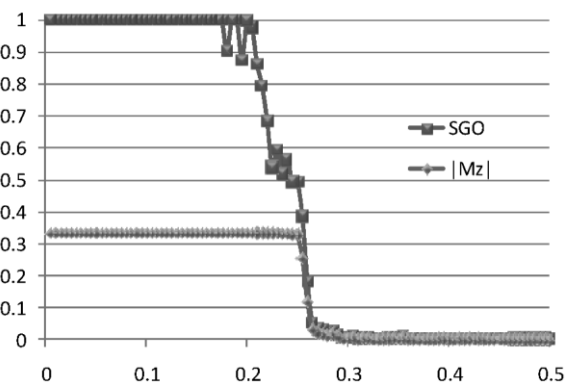


図7 第二近接交換相互作用を含めた結果

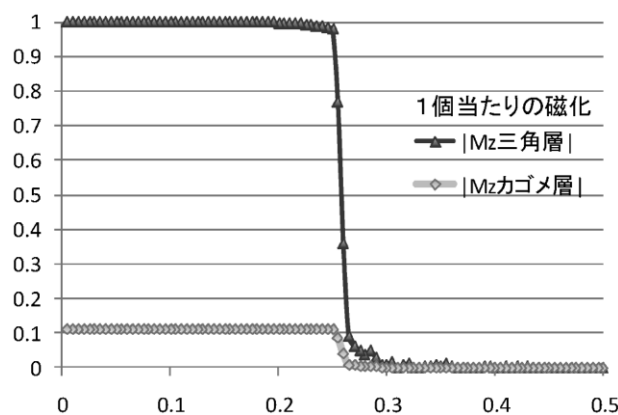


図8 スピン1個あたりのMzの内訳

4. 結論

ここで仮定した異方的イジングモデルの計算では、最近接格子相互作用のみの場合は、基底状態はスピングラス状態と一層おきの強磁性状態が縮退しているが、縮退度はスピングラス的な状態が圧倒的に多く、低温相の状態はスピングラス的であると言える。第二近接格子相互作用も含めた計算では、第二近接スピン間相互作用が強磁性的であれば、三角層が強磁性、カゴメ層が不規則となる磁気構造が実現する。これは Zheng 等³⁾, Kubo 等⁴⁾及び Zenmyo 等⁵⁾の実験結果から推定された構造と大筋で一致する。

参考文献

- 1) M. J. Harris, S. T. Bramwell, D. F. McMorrow, T. Zeiske, and K. W. Godfrey: Phys. Rev. Lett. 79 (1997) 2554.
- 2) A. P. Ramirez, A. Hayashi, R. J. Cava, R. Siddharthan, and B. S. Shastry: Nature 399 (1999) 333.
- 3) X. G. Zheng, T. Kawae, H. Yamada, K. Nishiyama, and C. N. Xu: Phys. Rev. Lett. 97 (2006) 247204.
- 4) H. Kubo, K. Zenmyo, M. Tokita, T. Hamasaki, M. Hagihala, and X.G. Zheng: J. Phys. Soc. Jpn. 77 (2008) 013704.
- 5) K. Zenmyo and M. Tokita: J. Magn. Mag. Mater. 321 (2009) 2192.
- 6) B. A. Berg and T. Neuhaus: Phys. Rev. Lett. 68 (1992) 9.