

反強磁性三角格子 $\text{Cu}_{1-x}\text{Ag}_x\text{CrO}_2$ における 低エネルギー磁気励起の次元クロスオーバーの発見

三角格子上的反強磁性スピン系は幾何学的フラストレーションを伴う系の典型の一つである。1973年に P. W. Anderson が反強磁性三角格子において量子力学的なスピン液体状態を提案して以来、スピン液体が高温超伝導のメカニズムとも深く関連しているとの考えもあり、多様なモデル・物質において擬二次元反強磁性三角格子の基底状態の解明が試みられてきた。現在までに、単位格子上の3スピンの互いに相対角 120° を取り合うネール状態が基底状態であることが判っている幾つかの理論模型が提起され、また、幾つかの現実の物質においてはスピン液体的な状態が実現している可能性が指摘されている。

最近、鹿児島大学、東京大学、日本原子力研究開発機構の研究者からなるグループは、擬二次元反強磁性三角格子を有するデラフォサイト酸化物 CuCrO_2 (図1) において、反強磁性 Cr 三角格子面の面間にある Cu 層の一部を Ag 置換すると、Cr 三角格子面間の磁気的相互作用が弱まり、低エネルギー磁気励起が異方的三次元特性から二次元特性へと次元クロスオーバーを起こすことを構造・磁化・磁気比熱の評価と中性子散乱実験により明らかにした。この研究は、日本物理学会発行の英文学術誌 Journal of the Physical Society of Japan (JPSJ) の 2009 年 1 月号に掲載される。

現実の反強磁性三角格子を持つ物質の磁性においては、三角格子面内の反強磁性相互作用に加え、三角格子面間の磁気的相互作用の影響を無視できない。多くの場合、面間相互作用は三次元の長距離磁気秩序を(有限温度においても)もたらし、三角格子の幾何学的フラストレーション効果を抑制する。本研究で着目するデラフォサイト酸化物 CuCrO_2 も同様であり、 Cr^{3+} ($S = 3/2$) の三角格子を含む CrO_2 層間のわずかな磁気的相互作用の存在により基底状態は三次元秩序を持った 120° ネール状態となる。その磁性の三次元性を反映して低温磁気比熱は異方的三次元マグノンの特徴である T^3 に比例した温度依存を示す。本研究では、このような CuCrO_2 に対して CrO_2 層間にある Cu の一部を Ag 置換すると、 CrO_2 層間の磁気的相互作用が弱まり、三角格子面内の磁性の二次元性が相対的に強まることを見出した。図2に示す様に、Ag 置換を行うと、三次元秩序の目安であるネール温度が低下し、磁気転移に伴う磁気比熱のピークが消失し、低温磁気比熱の温度

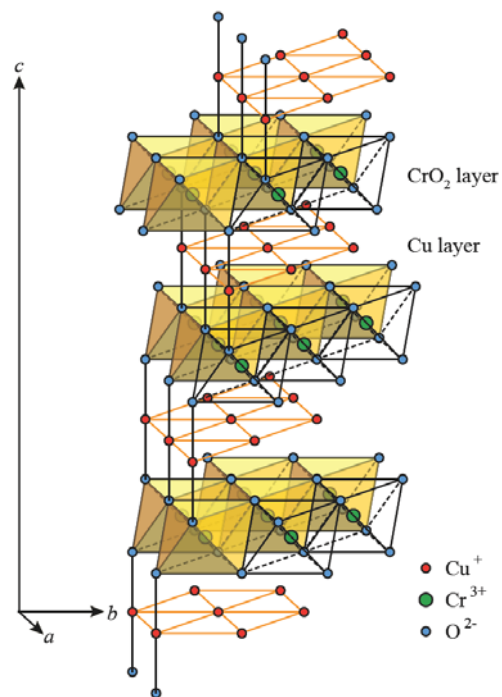


図1 デラフォサイト結晶構造

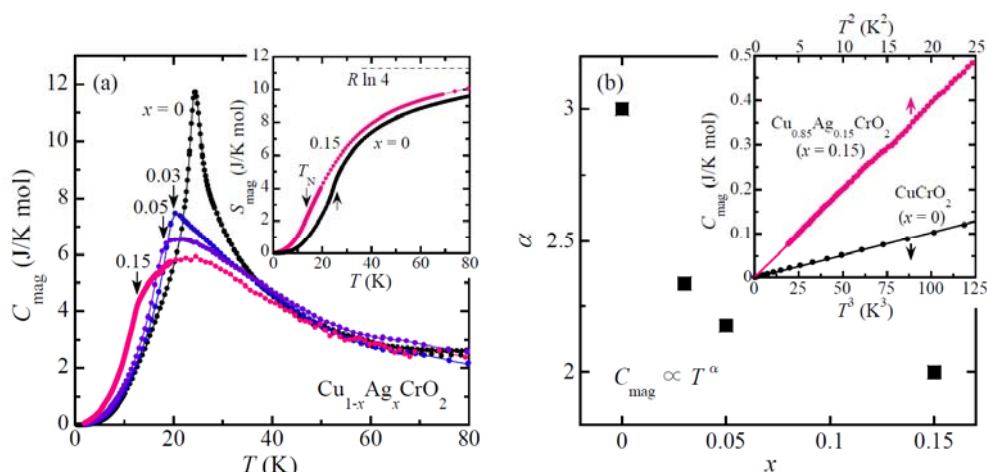


図2 $\text{Cu}_{1-x}\text{Ag}_x\text{CrO}_2$ の、(a) 磁気比熱 C_{mag} と磁気エントロピー S_{mag} (挿入図)、および、(b) 低温での C_{mag} の温度依存性を表す冪指数 α の Ag 置換率 (x) 依存性 (挿入図は α を決めるフィッティングの例)。

依存性が T^3 から T^2 に連続的に変化する。 T^2 に比例する温度依存性は二次元マグノンの特徴である一方、スピン液体が提案されている他の三角格子物質で観測される磁気比熱の温度依存性でもあるため、その起源は何であるのか興味を持たれる。一方、高分解能の中性子散乱実験により、Ag 置換した物質では、(おそらく T^2 に比例する低温磁気比熱と関連する) 二次元の低エネルギー磁気励起が顕著となり、その低エネルギー磁気励起がネール温度をまたぎ最低温から 80K までの幅広い温度範囲で存在することが見出された。

三角格子を持つ物質においては、優れた熱電特性や超伝導などが見出されており、それらの特異な物性と反強磁性三角格子との関わりが興味を持たれている。本研究の成果は、反強磁性三角格子の理解を深め、従来の研究の検証や未知の現象の発見につながる可能性があるものとして、多くの研究者の注目を集めている。さらに、本物質系 $\text{Cu}_{1-x}\text{Ag}_x\text{CrO}_2$ は、磁性イオン Cr^{3+} を非磁性イオン Mg^{2+} で置換することによりある程度までのホールドーピングが可能であることから、磁性の次元性とキャリア濃度の制御が可能な新たな $S = 3/2$ 反強磁性三角格子のモデル物質となり、より詳細な研究による今後の発展が大いに期待される。

論文掲載誌：J. Phys. Soc. Jpn. 78 (2009) No. 1 p. 013604

電子版：<http://jpsj.ipap.jp/link?JPSJ/78/013604/>

<情報提供：奥田哲治（鹿児島大学）>