

カゴメ反強磁性体の熱力学的振舞い

筑波大物理・中村統太、阪大理・宮下精二

1 はじめに

グラファイト上に吸着されたヘリウム原子の薄膜の比熱測定の実験とそれに続く Elser によるカゴメ格子の提案以降、カゴメ反強磁性体への興味が急速に広まった。この実験では、ヘリウム原子の第二層目がちょうど埋まると思われる吸着濃度の時低温 (mk 領域) で比熱のピークが観測され、さらにこの比熱測定からエントロピーを見積もったところ、約半分が消滅していたという報告がなされた。まず、このピークは第二層、第三層、と各層がちょうど満杯になった時に現れる傾向にあり、原子が動けなくなったであろうと思われる時に現れる。それ以外の濃度の時には原子が動いてフェルミ流体のような振舞いを見せ、低温側のピークは消滅する。第一層のみの場合には何も起こらない。以上のような吸着濃度を変えた実験により、第二層目の原子が理想的な二次元量子スピン系をなして、それによって比熱に異常が起きると考えられている。また、エントロピー消失に関しては測定したよりもさらに低温側になにかしらの比熱の構造 (いわゆるダブルピーク) があることが予言されている。

カゴメ反強磁性体モデルは実験事実を離れても、純粹に理論的に興味深いことが多々あるのは言うまでもない。その一つには、古典系では比熱に低温でのピークがないことから、量子性が有限温度の性質にまで影響を与えている可能性があるということである。これは基底状態付近にマクロな縮退がある系に共通な性質である。また、基底状態の秩序に関してもまだ明らかにされてはいない。古典的には基底状態は無限に縮退しており、その中の特定の構造が量子揺らぎによって唯一の基底状態として選ばれるかどうか焦点となっている。

これらカゴメ反強磁性体に関する、現在のところの風潮は、

- 基底状態は disorder
- 比熱にはダブルピークがある

となっている。我々はこの後者の問題について数値的にある程度明らかにすることを目的として以下に述べる数値計算を行なった。なぜなら、現在まで行なわれてきた数値計算はスピン数がまだ小さくて有限サイズの効果を見逃すことができないものであることから、比較的大きなサイズの計算が必要だと考えたからである。

2 数値的方法

大きなサイズを扱うために、量子モンテカルロ法を用いる。ただし、この際通常の方法によると負符号問題が出てきて、實際上計算が不可能となる。そこで、最近宮下によって提案された

Transfer-matrix Monte Carlo method を使う。

この方法では、全系のスピンの内、モンテカルロサンプルするスピンと、あらかじめトレースアウトするスピンとの二つに分ける。その時の分け方で必要なのは、これら二種類のスピンのそれぞれが、お互いが他方を孤立させていないといけないうことである。たとえば、トレースアウトするスピンはクラスターを組んでいて、そのクラスター同士の間には必ずモンテカルロサンプルするスピンが存在して各クラスター同士は孤立している。同じことがモンテカルロサンプルするスピンにも言えてないといけないう。この孤立していることにより、モンテカルロフリップの局所性が保証される。

図 1 にカゴメ格子とこれらスピンの配置を示す。白丸で示した格子点上のスピンがモンテカルロサンプルされるもので、黒丸のスピンがあらかじめ転送行列法によりトレースアウトされるものである。まず、このスピンの色分けとは関係なく通常の Trotter 分解を行なう。この分解後、白丸スピンの状態更新をする度に、黒丸スピンに関する自由度を転送行列を Trotter 層の下から上まですべて掛け合わせてトレースアウトすることによって、今実現している白丸スピンの配位に関するボルツマン重みを計算する。従って、実空間方向に関しては局所的だが Trotter 方向に関してはグローバルな情報を含む重みを計算してることになる。

サンプリング効率向上のため Reweighting 法を用いた。これによって、1 回のある温度での simulation からそのまわりの 5 つの温度におけるデータが得られ、局所的な温度依存を見ることが出来た。

3 計算結果

図 2 に比熱の計算結果を示す。 $N = 18$ のモンテカルロ結果は同じサイズの Elstner and Young の対角化の結果と一致しており、この計算の確からしさを保証している。

比熱のダブルピークに関しては現在までの計算結果からはその存在はサイズ依存性が少なく安定に存在すると結論する。高温側ピーク及び、低温側ピークとの間の谷底の位置及び大きさのサイズ依存がないこともこの系の性質を反映している、つまり、カゴメ反強磁性体の有限温度での振舞いが比較的短距離な性質で決まっているのではないと思われる。また、 C/T を積分することによりエントロピーを計算してみた。低温側ピークを除いて高温側ピークの裾野を直線的に $T = 0$ で $C = 0$ に伸ばして計算すると、今まで得られた結果と同様に $\sim 0.67 \ln 2$ を与える。一方、低温側ピークを勘定に入れ、低温については simulation した最低温度のデータから直線的に原点に線をひいて近似すると、 $N = 36$ では $\sim (0.94 \pm 0.07) \ln 2$ となり低温側ピークによってエントロピーの損失はそのほとんどが回復される。

高温側の比熱はかなり早い時点から T^{-2} 的な振舞いをしていることも明らかになった。従って、Greywall らの実験で高温側比熱が T^{-1} の様に振舞う結果が出ているのはこれと矛盾し、ヘリウム膜の高温側ではもはやカゴメ格子が実現していないか、もしくは彼らの実験が正しく行

なわれていないかのどちらかであろうことを示唆している。

つぎに、uniform susceptibility も図 2 に示す。uniform susceptibility には何の特異性も見受けられず、 $T/J \sim 0.125$ で急激に減少する。またこの温度はダブルピークのピーク位置の温度と一致しているのは偶然か否か。この結果もなにかしら示唆的である。というのも、カゴメ格子を単純化した Δ -chain との類似性、「スピングャップの約半分に相当するところに低温側のピークが立つ」、が見られるからである。36 サイトまでの数値対角化の結果からの外挿によってカゴメの場合にも $0.25J$ 程のスピングャップがあることが報告されている。従って、カゴメの低励起状態の性質も Δ -chain の場合のそれと類似性があるのかも知れない。

uniform chiral susceptibility と staggered chiral susceptibility の測定結果を図 3 に示す。Chirality については、この計算の範囲内ではサイズ依存性が見られない。また、 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 構造に特徴的な staggered chirality と $q=0$ 構造に特徴的な uniform chirality の差も見られない。確かに、このような有限温度のデータから基底状態を推測するのは多少無理があるかも知れないが、chirality のオーダーの成長が見られなかったことからこの計算は基底状態に秩序がない描像を支持する結果となった。

短距離 S^z - S^z 相関を図 4 に示す。最近接相関は単純に $T \rightarrow 0$ の外挿をしたものと基底エネルギーの値とが一致して、比較的大きな値を持つ。一方、次近接より遠いペアの相関に関しては急激にその値が小さくなり、 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 構造か $q=0$ 構造のどちらが実現しているかの区別はこの有限温度の結果からは推測できない。特に、2-step bond 離れたペアの 2 種類のとり方 (inset 図の (3 と 7) の組合せと (7 と 8) の組合せ) に値がよらない事によって磁気的秩序の消失が示唆される。ただ、simulation した温度以下でこれらの相関に特異性がないのであれば、この計算結果も磁気的秩序のない基底状態を支持するものである。

4 結論

今回行なった計算の結果、今のところの結論は

- 基底状態は disorder
- 比熱にはダブルピークがある

という現在の風潮を補強するものとなった。しかし、比熱の低温側のピークの高さに関しては誤差が大きいこともあり、定量的には確定はしていない。しかし Reweighting で見た温度依存が増加傾向にあることから低温ピークの存在自体は疑いのないものだと考えている。

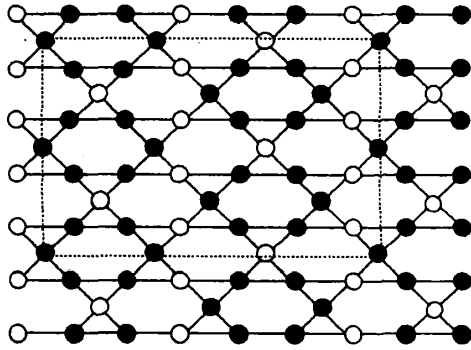


Figure 1: カゴメ格子上的のモンテカルロサンプルするスピ (白丸) とトレースアウトするスピ (黒丸)。点線は $N = 36$ の境界

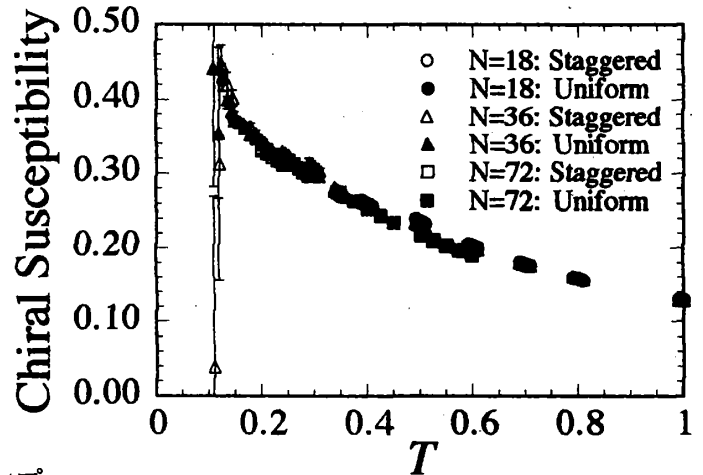


Figure 3: Uniform chiral susceptibility と Staggered chiral susceptibility のデータ。

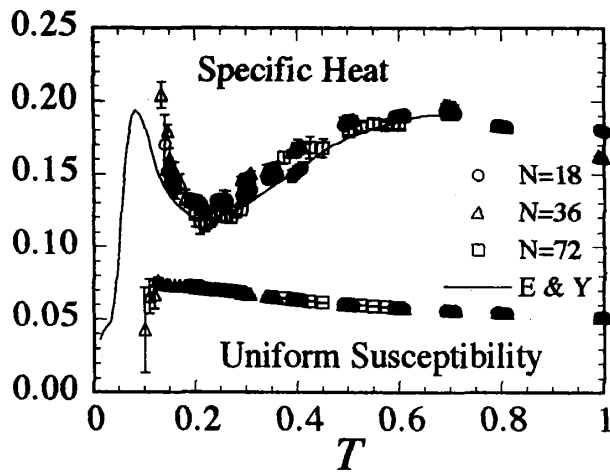


Figure 2: $N = 18, 36, 72$ の比熱と uniform susceptibility の計算結果。実線は Elstner and Young による数値的対角化の結果。

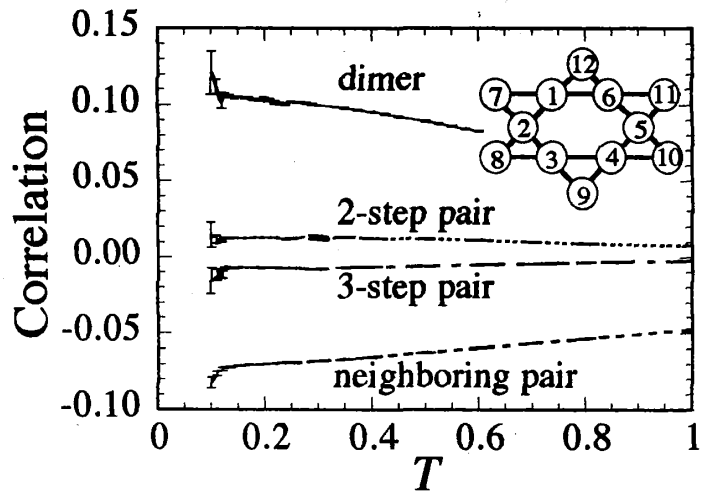


Figure 4: 短距離の S^z-S^z 相関。系のサイズは $N = 36, 72$ 。負の絶対値が一番大きいものは最近接相関で基底エネルギーの値と一致する。2-step pair とはサイトにして2つ離れているもの、例えばinsetの3と7や7と8。3-step pair は3つ離れているもの。dimer 相関は $(1/4 - S_1 \cdot S_2)(1/4 - S_3 \cdot S_4)(1/4 - S_5 \cdot S_6)$