研究論文

 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 型の歪みを持つ三角格子上の $S = 1/2$ ハイゼンベルク反強磁性体 — 磁化過程と磁化率 —嶋田 ありさ¹, 中野 博生², 坂井 徹^{2,3}, 吉村 一良^{1*}¹ 京都大学大学院理学研究科, 〒 606-8502 京都市左京区北白川追分町.² 兵庫県立大学大学院物質理学研究科, 〒 678-1297 兵庫県赤穂郡上郡町光都 3-2-1.³ 量子科学技術研究開発機構 SPring-8, 〒 679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1.**The $S = 1/2$ Heisenberg Antiferromagnet on a Triangular Lattice with $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Type Distortion —Magnetization Process and Magnetic Susceptibility—**Alisa SHIMADA¹, Hiroki NAKANO², Toru SAKAI^{2,3} and Kazuyoshi YOSHIMURA^{1*}¹ Graduate School of Science, Kyoto University, Kitashiragawa-Oiwake-Cho, Sakyo-ku, Kyoto 606-8502, Japan.² Graduate School of Material Science, 3-2-1 Kouto, Kamigori-cho, Ako-gun, Hyogo 678-1297, Japan.³ National Institutes for Quantum and Radiological Science Technology (QST) SPring-8, 1-1-1 Kouto, Sayo-cho, Sayo-gun, Hyogo 679-5148, Japan.

Received October 3, 2017; Revised October 22, 2017; Accepted October 23, 2017

ABSTRACT

We study the Heisenberg antiferromagnet on a triangular lattice with $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -type distortion by numerical-diagonalization method. We obtain the zero-temperature magnetization process and the temperature dependence of the magnetic susceptibility. Our results suggest that, between the nondistorted triangular-lattice and dice-lattice systems, a nontrivial intermediate phase appears, where a spontaneous magnetization occurs but its magnitude is smaller than one-third of the saturated magnetization. In the small-distortion region toward the spontaneously magnetized phase, the magnetic susceptibility shows a two-step behavior of its peak structure.

KEY WORDS

frustration, Heisenberg antiferromagnet, numerical-diagonalization method, spontaneous magnetization, susceptibility

1 緒 言

「あちらを立てればこちらが立たず」は人間関係の難しさを表現したことわざとして良く知られている。同じような状況が起るのは人間社会だけではない。自然現象の中でもしばしば現れる。それは「フラストレーション」と呼ばれる状況のことであり、その典型事例に磁性体がある。磁性体は小さな磁石の集合体であり、その小さな磁石は電子が持つスピンの役割を担う。隣接するスピン間の相互作用が反強磁性的であり、そういった相互作用の繋がりが三角形を形成する場合、このフラストレーションが発生する。磁性の研究では、そのような幾何学的な構造に起因してフラストレーションを有する系が注目されてきた。フラストレーションを含む量子系では、系の中で揺らぎが大きくなる。その量子効果によって非自明な現象がしばしば発現し、強い関心を引いている。

このような三角形構造を含む代表的な格子が三角格子である。この格子は、正三角形が辺共有という規則で平面を敷き詰めることで得られる。とりわけ、この格子上の $S = 1/2$ ハイゼンベルク反強磁性体では、その基底状態がスピン液体状態となっているとして Anderson¹⁾ が指摘して以降、長期にわたって、三角格子系に関する様々な研究²⁻¹⁰⁾ が行われた。その結果として現在では、歪みのない三角格子系の基底状態のスピン状態は 120 度構造となっていると広く信じられている。また、三角格子系で良く記述される物質^{11,12)} も知られており、三角格子系をめぐるフラストレート磁性体の理解は、実験と理論の両面から進んでいる。

とはいえ、物質の中で相互作用ネットワークを理想的な形で実現させることは一般には容易なことではなく、想定していた格子形状に何らかの歪みが入ることは珍しくない。その状況から、三角格子系では三角格子の一次元方向に沿った歪みの影響¹³⁻²¹⁾ が詳しく調べられている。相互作用に不均一な

* Corresponding author, E-mail: kyhv@kuchem.kyoto-u.ac.jp

歪みが生じる場合^{22,23)}もランダムネス効果として研究されている。もちろん、歪みのタイプは、一様なものに限っても上述の一次元方向に沿った歪みの場合だけでなく他にも可能性はある。本論文では、そのような様々な歪みのタイプのうち、 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 型の歪みに着目する。 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 型の歪みの具体的な形は次節で説明するが、この歪みが導入された場合であっても、歪みのない三角格子と同じ二次元的な性質を保っている。この点で上述の一次元方向に沿った歪みとは異なる性質を示す可能性がある。

三角格子に $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 型の歪みを加えていく場合、その極限の一つにダイス格子²⁴⁾がある。ダイス格子は、正六角形を隙間なく敷き詰めることで得られる蜂の巣格子の各六角形を3個のひし形で敷き詰めることで形成される。各六角形の内側は、内角の一つが $\pi/3$ となるひし形3個を互いに $\pi/3$ だけ回転させた位置で隙間なく敷き詰められている。ダイス格子に至るとフラストレーションは消失し、いわゆるマーシャル・リープ・マティスの定理^{25,26)}が成り立つ。その結果、ダイス格子のハイゼンベルク反強磁性体では、up-up-down状態と呼ばれるフェリ磁性の基底状態が実現する。ハイゼンベルク反強磁性体が、三角格子の中で $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 型の歪みを持ち、120度構造の基底状態を示す三角格子からup-up-down状態のフェリ磁性基底状態を示すダイス格子に至る過程でどのような挙動の変化を示すか、ということが問題となってくる。そのような状況の中、このタイプの歪みの制御で、120度構造の相とup-up-down状態の相との間に、非自明な自発磁化を持つ別の相が基底状態に広がっていることが最近になってわかってきた²⁷⁾。ここで、この別の相の自発磁化の大きさは、自発磁化が発現しない状態に相当する磁化ゼロより大きく、飽和磁化の1/3よりも小さい中庸な自発磁化の値となっている。今後本文中ではこの状態を「中間状態」と呼ぶことにする。フラストレーションを持たないダイス格子の側から見ると、中間状態が現れるこの挙動は、ダイス格子のフェリ磁性基底状態がフラストレーションによってどのように崩壊していくのか、と捉えることもできる。マーシャル・リープ・マティスの定理を満たす反強磁性体で現れるフェリ磁性が系の歪みによるフラストレーションで崩壊する様子は、他の複数の系でも調べられている。論文27)と同じように中間状態の相が現れて徐々に崩壊していく様子は、歪んだカゴメ格子上の反強磁性体で知られている^{28,29)}。その一方で、同じような中間状態相は見つかっていない複数の事例³⁰⁻³⁴⁾も報告されている。これらの事例を概観すると、フラストレーションでフェリ磁性が崩壊する際、何らかの要因で崩壊の様子の違いが生じていると推定される。しかしながら、個々の挙動の理解が十分深まっているとは言えず、現時点でその要因は明らかでない。それぞれの事例の挙動を様々な視点から詳しくすることは、フェリ磁性崩壊に違いが生じるこの原因を解明する上で不可避な道筋であり、また、磁性研究の基礎的な理解を深める意味でも大いに意味がある。

そのような状況を背景とする本研究の目的は、 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 型の歪みを持つ三角格子上の $S = 1/2$ ハイゼンベルク反強磁性

体の挙動を絶対零度における磁化過程の振舞と磁化率の温度依存性の視点から捉えて、この系で報告された飽和の1/3よりも小さい自発磁化を持つ中間状態の相の出現に関わる知見を理論的に明らかにすることである。とりわけ、磁化率を温度依存性という形で理論的に調べることは重要でありながら、計算科学的手法を活用するとしても一般にはそれほど簡単なことではない。磁性体の磁化率の温度依存性と言えば、ハイゼンベルク型の反強磁性交換相互作用を持つ場合を含む量子スピン一次元鎖の $S = 1/2$ 系について、有限系の数値対角化法に基づいて行ったBonnerとFisherの研究³⁵⁾が歴史的な一里塚として広く知られているが、今回のようなフラストレーションを持つ有限系では可能な計算手法が限られる事情もあり、非自明な中間状態を発現する相転移を伴う事例で磁化率がどのような温度依存性を示すか、よくわかっていない。本論文が取り扱う事例は、まさにその事例に当たる。

本論文は、以下のような構成となっている。次の節では、本研究の対象となっている模型および研究手法としての計算手法を紹介する。その次の節では、我々の計算結果を提示し、議論していく。三角格子に歪みを加えていく場合に、絶対零度における磁化過程と磁化率の温度依存性の挙動を報告し、最後の節で結果をまとめる。

2 模型と計算方法

この節では、まず、本研究で取り扱う系のハミルトニアンを示す。このハミルトニアンは、外部磁場 H を含まないスピン間相互作用の項と外部磁場の影響を考慮するためのゼーマン項の2つの項で表現でき、以下の形を持つ。

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_{\text{Zeeman}} \quad (1)$$

この中で第一項は

$$\mathcal{H}_0 = \sum_{i \in B, j \in B'} J_1 \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + \sum_{i \in A, j \in B} J_2 \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + \sum_{i \in A, j \in B'} J_2 \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \quad (2)$$

の形を持つ。ここで、 $\mathbf{S}_i$ はサイト i に局在する $S = 1/2$ スピン演算子であり、サイト i はFig. 1で示す歪んだ三角格子上の格子点である。単位胞には3個のスピンサイトが含まれ、歪みの型は $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 型と呼ばれる。スピンの個数を N_s とする。格子の頂点は、A, B, B'の3つの副格子に分けられ、それぞれ、 $N_s/3$ 個のスピンサイトを含む。本論文で取り扱うのはハイゼンベルク模型であり、隣接するスピン同士に作用する相互作用が等方的な反強磁性的交換相互作用となっている。Fig. 1で細線は J_1 の、太線は J_2 の相互作用を示している。Aのサイトは6本の J_2 で周囲のスピンと相互作用しており、一方、BおよびB'のサイトは、3本の J_1 と3本の J_2 で周囲のスピンと相互作用している。本論文では J_1 をエネルギーの単位として使い、 $J_1 = 1$ として固定する。 J_2/J_1 を変化させることで三角格子の歪みを制御し、この比を r として表すことにする。ここでは $J_1 > 0$ かつ $J_2 > 0$ の場合のみを考える。また、 $J_2 \geq J_1$ すなわち $r \geq 1$ の場合を検討していく。 $J_1 = J_2$ 即

Fig. 1 Triangular lattice with a distortion of the $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ type. Its unit cell is shown by broken line. Thin and thick lines denote J_1 and J_2 interactions, respectively. Vertices of the lattice are divided into three sublattices, A, B, and B'. Each sublattice point in the A sublattice is connected by six interaction bonds J_2 . Each sublattice point in the B or B' sublattice is connected by three interaction bonds J_2 and three interaction bonds J_1 . An arrow indicates a representative of lattice points for each sublattice.

ち $r=1$ の場合には、この系は歪みのない三角格子に相当する。この場合の基底状態は自発磁化が 0 の状態であることはよく知られている。一方で、 $J_1 \rightarrow 0$ 即ち $r \rightarrow \infty$ の場合、系はダイス格子に相当していて、その基底状態におけるスピンの状態は up-up-down 状態である。これは、飽和の $1/3$ 自発磁化を示すフェリ磁性状態である。一方、ゼーマン項は以下の形で与えられる。

$$\mathcal{H}_{\text{Zeeman}} = -g \mu_B H \sum_j S_j^z \quad (3)$$

ただし、式 (3) で g は g 因子であり、 μ_B はボーア磁子である。

次に、本研究で計算対象とする有限サイズ系について説明する。その形状は Fig. 2 で示す。スピンの個数は、 $N_s = 12, 21, 27, 36$ の場合を考え、それぞれで周期的境界条件をとる。この 4 つの有限系ではそれぞれの副格子に属するスピンサイト数は等しい。また、各有限系の形状は、内角の一つが $\pi/3$ となるひし形である。これらの形状を採用するのは、三角格子が持つ二次元性がより良く表現されている形と考えられるからである。

我々が採用する研究の手法は数値的厳密対角化法である。この方法は近似が全くなく、偏りのない手法として知られ、多くの研究で採用されてきた方法である。したがって、系に関する信頼性の高い情報を得ることが期待される。計算のアルゴリズムとしては、ランチョス法とハウスホルダー法のいずれかで実行する。ランチョス法では、 $\sum_j S_j^z = M$ が一定の部分空間に属する H_0 の最低エネルギーを計算する。この計算によって得られる固有エネルギーを $E(N_s, M)$ のように記述する。ここで、 M は、飽和磁化の値 $M_{\text{sat}} (= N_s/2)$ を上限として、整数か半整数の値をとる。一方、ハウスホルダー法では、 M に関する各部分空間に属する全てのエネルギーを計算する。この結果は、磁化率の温度依存性を得るのに使われる。ただし、ランチョス法で取り扱える系よりも更に小さなものに限られ、本論文でハウスホルダー法の計算を行ったのは $N_s = 12$ の場合だけである。

本研究では有限系に対して絶対零度の磁化過程を描く。こ

Fig. 2 Shapes of finite-size clusters. Rhombuses of broken lines in Panel (a), (b), (c), and (d) denote the clusters for $N_s = 12, 21, 27$, and 36 , respectively.

れは、磁場を強くすることによって系の磁化が M から $M+1$ に増加する状況を考えることで得られる。そのような磁場は以下の式で与えられる。

$$g \mu_B H = E(N_s, M+1) - E(N_s, M) \quad (4)$$

本論文で調べる系では自発磁化が現れることに関して、式 (4) で得られた磁化過程において $\lim_{H \rightarrow 0} M$ で M_{spo} を定義する。なお、 N_s が奇数である場合には、 M_{spo} が最小となる場合であっても M_{spo} が 0 にならず、すなわち $M_{\text{spo}} = 1/2$ となることがあるものの、それは自発磁化が現れたことを意味しないので気を付ける必要がある。さらに、以下では、磁化を規格化して $m = M_{\text{spo}}/M_{\text{sat}}$ を使う。

ランチョス法の計算の一部分は、MPI を用いて並列化された計算コードで実行された。この並列化コードは、元々、ハルデン・ギャップの研究の際に開発され³⁶⁾、その後行われた複数の研究でこの並列化コードの有用性がすでに確認されている³⁷⁻⁴⁰⁾。

磁化率 χ の定義は、以下の式で表す。

$$\chi = \left. \frac{\partial \langle M \rangle}{\partial H} \right|_{H=0} \quad (5)$$

ここで、 $\langle M \rangle$ は、温度 T における磁化の熱平均であり、カノニカルアンサンブルの方法で評価する。この統計平均の評価の際にハウスホルダー法で得た系の全てのエネルギーが活用される。

3 結果と考察

本節では、歪んだ三角格子上のハイゼンベルク模型 (1) の磁化過程と磁化率の結果を示し、これを考察していく。

まず、絶対零度の磁化過程の様子を検討するが、本論文で取り扱う $r \geq 1$ の範囲のうち、両極限、すなわち、三角格子とダイス格子に近い場合のものを考える。Fig. 3 (a) では、歪み $r = 1.05$ の場合の磁化過程を提示している。この図は三角格子を少しだけ歪ませた場合に対応する。歪みのない三角格

Fig. 3 Magnetization processes of finite-size clusters. Panel (a) and (b) depict the cases for $r = J_2/J_1 = 1.05$ and $r = J_2/J_1 = 2$, respectively. Lines with circles, squares, diamonds, and crosses denote results for $N_s = 12, 21, 27$, and 36 , respectively.

子の磁化過程は詳しく調べられており、数値対角化法による結果も報告されている^{8,9)}ので、直接比較が可能である。Fig. 3 (a)では、飽和の1/3の高さに磁化プラトーが発現している。それ以外の高さでは、有限系であることに起因する階段形状ではあるものの、概ね滑らかに磁化が変化している。無磁場においては、 N_s の偶奇に応じて磁化 M は0か1/2であり、自発磁化はないことを意味する。このように、Fig. 3 (a)の様子は、歪みのない三角格子系とほとんど変わらないことが分かる。一方、Fig. 3 (b)は、歪みが $r=2$ の時の磁化過程を提示している。この図は、三角格子から大きく歪み、逆にダイス格子に近い場合に相当する。三角格子系に比べて大きな違いは、飽和の1/3の高さの磁化プラトートの磁場領域が大きく広がっていることである。そのプラトーが、無磁場の状況まで広がっていてそのまま自発磁化になっている。この振舞は、全てのシステムサイズで共通な結果である。すなわち、 $m = 1/3$ の自発磁化を持つと言える。 $m = 1/3$ の自発磁化を持つ状態は、 $r \rightarrow \infty$ のダイス格子系が示すフェリ磁性状態と共通である。したがって、Fig. 3 (b)の様子は、ダイス格子系とほぼ同じ磁化過程となっていると考えられる。

Fig. 3では三角格子に近い事例とダイス格子に近い事例を提示したので、次は、これらの両事例に挟まれた r の範囲で、両者から離れた場合を検討する。Fig. 4はそのような $r = 1.65$

Fig. 4 Magnetization processes of finite-size clusters for $r = J_2/J_1 = 1.65$. Panel (b) is a zoom-in view of a part of panel (a). Symbols are the same as in Fig. 3.

の場合の磁化過程の結果である。なお、Fig. 4 (b)は、磁場が小さい領域を拡大したもので、数値データとしてはFig. 4 (a)と共通である。Fig. 4 (a)では、飽和の1/3の高さに磁化プラトーが広い磁場領域に現れている。この様子はFig. 3 (b)と共通である。一方で、Fig. 4 (b)で示されているように、磁場が小さい領域に別の状態が現れていて、この状態の磁化は飽和の1/3よりも小さい。それでも、磁場を小さくする極限で磁化は自発磁化がない場合に至るのではなく、自発磁化がない場合に相当する値よりも大きな値の磁化を残している。これは、この磁化過程で $\lim_{H \rightarrow 0} M$ としての磁化 M_{spo} が自発磁化となっていることを示しており、システムサイズに依らない結果である。可能な M の値に制約があることに起因してシステムサイズごとに M_{spo} の値に違いがあるものの、規格化した $m = M_{\text{spo}}/M_{\text{sat}}$ の値としてはシステムサイズごとのばらつきはそれほど大きくはなく、ほぼ共通の値となっている。すなわち $r = 1.65$ の場合では、無磁場の下での系の基底状態は、自発磁化0より大きく飽和の1/3よりも小さい自発磁化の状態となっている。これは、歪みのない三角格子系の状態とも異なり、あるいは、歪みの大きい事例であるダイス格子系の状態とも異なり、これらの間に中間状態が発現していることを示している。Fig. 3 (a)、Fig. 3 (b)およびFig. 4 (a)で示した磁化過程で振舞の変化をまとめて見ると、Fig. 3 (a)で発現している飽和の1/3の高さの磁化プラトーは、歪みの増大とともに

Fig. 5 r dependence of the spontaneous magnetizations. Results for $N_s = 12, 21, 27$, and 36 are denoted by circles, squares, diamonds, and crosses, respectively.

に、 $H=0$ へ近づくように磁場領域が広がっていく。しかし、飽和の $1/3$ の高さの磁化プラトーが $H=0$ に到達する前に別の自発磁化の状態が先に発現し、その後に磁化プラトー状態が $H=0$ でも現れる。

それでは、Fig. 3 で現れている飽和の $1/3$ よりも小さい自発磁化の中間状態はどのような $r = J_2/J_1$ の範囲で広がっているのだろうか。Fig. 5 は $N_s = 12, 21, 27, 36$ の 4 種類の系に対する自発磁化の大きさの歪み r に関する依存性を示している。 $N_s = 21, 27$ の場合は N_s が奇数であるため、磁化が 0 となる状態は存在しない。その代わりに、 N_s が奇数の場合は $M = 1/2$ の状態が自発磁化がない場合に相当する。4 つの全てのシステムサイズで、飽和磁化の $1/3$ よりも小さい自発磁化をもつ中間状態が発現する。この中間状態相における自発磁化は、歪み r の増大に伴って、可能な M の値を連続的に取りながら単調に増大し、飽和磁化の $1/3$ に至る。また、システムサイズが大きくなるに従って中間状態が発現している領域の幅が徐々に広がっている。中間状態相出現に関して、 M_{spo} の連続単調増加と相領域の幅が広がる振舞は、システムサイズが大きい極限でもこの中間状態相が消失することなく生き残ることを強く示唆する。

次に、自発磁化が発現する r の転移点近傍の磁化率の温度依存性を考える。Fig. 6 は、 $N_s = 12$ での様々な J_2/J_1 の値に対する磁化率の温度依存性を示した。なお、ボルツマン定数は k としている。 $N_s = 12$ の系では、自発磁化が出現を始める $r = J_2/J_1$ の値は $r \sim 1.61$ であり、Fig. 6 に示している $J_2/J_1 = 1.62$ の事例は自発磁化が出現している場合に当たる。このときの磁化率は、低温側で発散する様子が現れている。このことは、 $J_2/J_1 = 1.62$ で自発磁化が出現していることと合致する。Fig. 6 を見るかぎり、 $kT/J_1 \geq 0.6$ を境界に高温域と低温域に分けることができるだろう。その高温側の領域では各曲線が r の値にほとんど依存していないことが確認できる。一方、低温側では r の値に依存して、磁化率の温度依存性が大きく異なる。歪みのない $r = 1$ の場合、 $kT/J_1 = 0.6$ 付近にピークがある。さらに低温に向かうと磁化率は単調減少し、やがて 0

Fig. 6 (Color online) Linear plot of temperature dependence of magnetic susceptibility for $N_s = 12$. Black, dark blue, green, yellow, violet, light blue, and red lines correspond to the cases for $J_2/J_1 = 1, 1.3, 1.4, 1.45, 1.52, 1.58$, and 1.62 , respectively. Inset depicts the results for $J_2/J_1 = 1, 1.3, 1.4, 1.45$ in ranges different from the main panel.

Fig. 7 (Color online) Logarithmic plot of temperature dependence of magnetic susceptibility given in Fig. 6. Black, dark blue, green, yellow, violet, light blue, and red lines correspond to the cases for $J_2/J_1 = 1, 1.3, 1.4, 1.45, 1.52, 1.58$, and 1.62 , respectively. The broken line is a guide line to capture the behavior of $1/T$.

となる。この様子は三角格子系を特徴づける挙動と考えられる。歪みを導入すると、ピークの位置が徐々に低温側に移動し、ピークの高さも増大する。このピークの変化が最終的に $J_2/J_1 = 1.62$ での磁化率の発散につながっているように見える。この様子は、自発磁化が発現する領域に向かって変化させていることと矛盾しない。

磁化率の温度依存性の変化の様子をもう少し詳しく捉える目的で、同じ数値データを対数プロットで表示してみる。結果はFig. 7に示した。 r を $r = 1$ から $r = 1.45$ へと変化させる間、 $kT/J_1 = 0.3$ 付近に膨らみが発生し、それが成長して一旦ピークとなる。しかし、 r が $r = 1.45$ より大きくなると、より低温に新たな膨らみが現れ、その新たな膨らみが $kT/J_1 = 0.3$ 付近で一旦ピークとなっていたものを凌駕し、新たなピークとなる。この新たなピークは、 r の増大とともに低温側にシフトしていき、ついには、温度に反比例する振舞につながっていく。この間、 $kT/J_1 = 0.3$ 付近の様子はピークでは

なくなるものの、膨らみとしては $J_2/J_1 = 1.62$ でも確かに残存している。Fig. 7 で現れているこの様子が示唆しているのは、 $r = 1.45$ を境界にして磁化率が二段階で変化しているということである。自発磁化を持つ相への転移で $r > 1.61$ において基底状態となる状態は、 $r = 1.45$ 付近で、 $r < 1.45$ でのピーク構造から分離してより低温側に新たなピーク構造を形成する形で現れる。このような磁化率の様子はこれまで知られていなかった。類似の中間状態が発現する歪んだカゴメ格子上の反強磁性体^{28,29)}では、取り扱った系のうち、ごく小さい系では中間状態は現れず、大きな系でのみ中間状態が発現していた。そのために、自発磁化を持つ中間状態への転移に向かうときの磁化率の変化を、捉えることが可能な事例とはなっていないのである。そういう状況から、ごく小さい系という制約のある範囲であっても、自発磁化を持つ中間状態への転移に向かうときの磁化率の変化を直接捉えることが出来て、相転移に関する知見を見出したことに本論文の意義がある。Fig. 7 で見たような磁化率の2段階変化における $r = 1.45$ のような特定の値自体は重要な意味を持つわけではない、という点には注意が必要である。実際、転移点の値自体、サイズ依存性を持っていることがFig. 5 でわかっているからである。本論文がFig. 7 で捉えた2段階変化を示す磁化率の振舞は、ごく小さな系だけから見た様子である。この振舞は、より大きな系での磁化率の振舞と比較することで検証され、それにより、無限系での振舞の理解をめざす必要がある。

最後に、実験的に報告されている物質について言及しておく。論文 41) では RbVBr_3 が論文 42) では RbFeBr_3 が、 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 型の歪みの三角格子系の候補物質として知られている。しかしながら、両者とも $r < 1$ に相当する物質であると報告されているので、本論文が対象とした $r \geq 1$ とは異なっている。そのため、本論文に関する振舞を実験的に検証するには別の物質を新たに調べる必要がある。一方、 $r < 1$ の場合についての理論的な知見としては、論文 43) が本論文とは別の自発磁化状態発現を報告している。三角格子系における歪みの効果を理解するうえでは、これらの知見を含めた統合的検討が望まれる。

4 結 言

本論文では、歪んだ三角格子上の $S = 1/2$ のハイゼンベルク反強磁性モデルを数値対角化法の計算によって調べた。この系は、歪みのない三角格子と歪みの大きい極限に相当するダイス格子との間で、これらの場合とは異なる基底状態が磁場のない状況下で実現する。そのような中間状態が生じる様子を系の磁化過程の振舞の中で明らかにした。この中間状態は、飽和の $1/3$ の高さよりも小さい自発磁化を持つ。このような小さな自発磁化を持つ中間状態に至る転移に向かって、歪みの小さい側から磁化率の温度依存性を調べ、二段階で変化する様子を捉えた。この様子は三角格子の歪みに伴う飽和の $1/3$ より小さい自発磁化の中間状態相の発現に関連する新たな知見である。本論文が取り扱った系は磁性体におけるフラストレーション効果を解明する上で重要な知見を与えてお

り、より多角的なアプローチで詳しく調べる価値がある。それにより、フラストレート磁性体の理解が深まることが強く期待される。

謝 辞

最後に、この研究を進めるに当たって大変多くの方々のご支援を受けました。この場をお借りして感謝致します。本研究は、文部科学省科学研究費助成事業・基盤研究 (C) (一般) 16K05418 と 16K05419、および新学術領域研究 (研究領域提案型) 16H01080 (JPhysics) の支援を受けました。本研究で行った数値計算の一部では、西森秀稔氏が開発した TITPACK2 が使われています。大規模数値計算の成果は、東京大学物性研究所および自然科学研究機構核融合科学研究所のスーパーコンピュータの共同利用によって得られたものです。

文 献

- 1) P. W. Anderson: Mater. Res. Bull., **8** (1973) 153.
- 2) D. A. Huse, V. Elser: Phys. Rev. Lett., **60** (1988) 2531.
- 3) Th. Jolicour, J. C. Le Guillou: Phys. Rev. B, **40** (1989) 2727(R).
- 4) R. R. P. Singh, D. A. Huse: Phys. Rev. B, **68** (1992) 1766.
- 5) B. Bernu, C. Lhuillier, L. Pierre: Phys. Rev. Lett., **69** (1992) 2590.
- 6) B. Bernu, P. Lecheminant, C. Lhuillier, L. Pierre: Phys. Rev. B, **50** (1994) 10048.
- 7) P. W. Leung, K. J. Runge: Phys. Rev. B, **47** (1993) 5861.
- 8) J. Richter, J. Schulenburg, A. Honecker: Lecture Notes in Physics (Springer, Heidelberg, 2004) Vol. 645, p. 85.
- 9) T. Sakai, H. Nakano: Phys. Rev. B, **83** (2011) 100405(R).
- 10) D. Yamamoto, G. Marmorini, I. Danshita: Phys. Rev. Lett., **112** (2014) 127203.
- 11) Y. Shirata, H. Tanaka, T. Ono, A. Matsuo, K. Kindo, H. Nakano: J. Phys. Soc. Jpn., **80** (2011) 093702.
- 12) Y. Shirata, H. Tanaka, T. Ono, A. Matsuo, K. Kindo: Phys. Rev. Lett., **108** (2012) 057205.
- 13) Z. Weihong, R. H. McKenzie, R. R. P. Singh: Phys. Rev. B, **59** (1999) 14367.
- 14) S. Yunoki, S. Sollera: Phys. Rev. B, **74** (2006) 014408.
- 15) O. A. Starykh, L. Balents: Phys. Rev. Lett., **98** (2007) 077205.
- 16) D. Heiderian, S. Sollera, F. Becca: Phys. Rev. B, **80** (2009) 012404.
- 17) J. Reuther, R. Thomale: Phys. Rev. B, **83** (2011) 024402.
- 18) A. Weichselbaum, S. R. White: Phys. Rev. B, **84** (2011) 245130.
- 19) S. Ghamari, C. Kallin, S. S. Lee, E. S. Sorensen: Phys. Rev. B, **84** (2011) 174415.
- 20) K. Harada: Phys. Rev. B, **86** (2012) 184421.
- 21) H. Nakano, S. Todo, T. Sakai: J. Phys. Soc. Jpn., **82** (2013) 043715.
- 22) K. Watanabe, H. Kawamura, H. Nakano, T. Sakai: J. Phys. Soc. Jpn., **83** (2014) 034714.

- 23) T. Shimokawa, K. Watanabe, H. Kawamura: Phys. Rev. B, **92** (2015) 134407.
- 24) A. Jagannathan, A. Szallás: Eur. Phys. J., **86** (2013) 76.
- 25) W. Marshall: Proc. R. Soc. London, Ser. A, **232** (1955) 48.
- 26) E. Lieb, D. Mattis: J. Math. Phys. (N. Y.), **3** (1962) 749.
- 27) H. Nakano, T. Sakai: J. Phys. Soc. Jpn., **86** (2017) 063702.
- 28) H. Nakano, T. Shimokawa, T. Sakai: J. Phys. Soc. Jpn., **80** (2011) 033709.
- 29) T. Shimokawa, H. Nakano: J. Phys. Soc. Jpn., **81** (2012) 084710.
- 30) H. Nakano, T. Sakai: J. Phys. Soc. Jpn., **82** (2013) 083709.
- 31) H. Nakano, T. Sakai, Y. Hasegawa: J. Phys. Soc. Jpn., **83** (2014) 084709.
- 32) H. Nakano, M. Isoda, T. Sakai: J. Phys. Soc. Jpn., **83** (2014) 053702.
- 33) M. Isoda, H. Nakano, T. Sakai: J. Phys. Soc. Jpn., **83** (2014) 084710.
- 34) H. Nakano, T. Sakai: Jpn. J. Appl. Phys., **54** (2015) 030305.
- 35) J. C. Bonner, M. E. Fisher: Phys. Rev., **135** (1964) A640.
- 36) H. Nakano, A. Terai: J. Phys. Soc. Jpn., **78** (2009) 014003.
- 37) H. Nakano, T. Sakai: J. Phys. Soc. Jpn., **80** (2011) 053704.
- 38) H. Nakano, T. Sakai: J. Phys. Soc. Jpn., **83** (2014) 104710.
- 39) H. Nakano, T. Sakai: J. Phys. Soc. Jpn., **84** (2015) 063705.
- 40) H. Nakano, Y. Hasegawa, T. Sakai: J. Phys. Soc. Jpn., **84** (2015) 114703.
- 41) H. Tanaka, K. Kakurai: J. Phys. Soc. Jpn., **63** (1994) 3412.
- 42) Y. Nishiwaki, A. Osawa, K. Kakurai, K. Kaneko, M. Tokunaga, T. Kato: J. Phys. Soc. Jpn., **80** (2011) 084711.
- 43) A. Shimada, T. Sakai, H. Nakano, K. Yoshimura: to be published in J. Phys.: Conf. Series.