

平成 22 年 5 月 31 日現在

研究種目：特定領域研究

研究期間：2005～2009

課題番号：17071011

研究課題名（和文）

リング交換が生む新奇な磁性状態の解明

研究課題名（英文）

Novel Magnetic States by Ring Exchange

研究代表者

桃井 勉 (Momoi Tsutomu)

独立行政法人理化学研究所・古崎物性理論研究室・専任研究員

研究者番号：80292499

研究成果の概要（和文）：

三角格子リング交換モデルでは、固体ヘリウム3で実現されるパラメーター領域で、スピンのネマティック相が出現し、磁化曲線の磁化 1/4 に狭いプラトー構造が現れることを示した。スピンのネマティック相がフラストレート磁性体において強磁性相の隣に一般的に出現することを明らかにした。また、遍歴粒子系における幾何学的フラストレーションがモット転移をリエントラント転移にすることや磁性状態に一次元的スピン相関を引き起こすことを明らかにした。さらに、ボーズ粒子系における超固体の出現条件を示した。他に、磁性の量子ダイナミクスおよびスピンのクロスオーバーを研究した。

研究成果の概要（英文）：

In the triangular lattice multi-spin exchange model in an experimentally estimated parameter regime, we found that magnons form two-magnon bound states, giving rise to a spin nematic order, and a narrow half-magnetization plateau also appears under magnetic field. It was revealed that spin nematic orders realize, in general, in frustrated magnets in the proximity to the ferromagnetic phase boundary. In addition, we studied strongly correlated electron systems on geometrically frustrated lattices, showing a reentrant behavior of Mott transition and formation of one-dimensional spin correlations. Stability of supersolid in bosonic particle systems was also tested in numerical simulations.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2005年度	7,500,000	0	7,500,000
2006年度	10,400,000	0	10,400,000
2007年度	10,400,000	0	10,400,000
2008年度	10,400,000	0	10,400,000
2009年度	5,300,000	0	5,300,000
総計	44,000,000	0	44,000,000

研究分野：

科研費の分科・細目：

キーワード：磁性、リング交換、固体ヘリウム3、磁気フラストレーション、スピンのネマティ

1. 研究開始当初の背景

固体 ^3He 薄膜において磁性秩序がない量子スピン流体状態が実験により観測された。固体ヘリウム3は不純物が無く、通常の磁性化合物に比べてクリーンな系である。そのため、理論と実験が非常に密接に研究を進められる物質である。この系は ^3He 原子（核スピン $1/2$ ）が三角格子を組む固体であるが、複数 He 原子のリング交換量子プロセスにより生ずる多体スピン・リング交換相互作用が強く存在し、磁性に重要な効果をおよぼす事が近年の国内外の研究により明らかになってきた。また、この様なリング交換相互作用は、電子のウィグナー結晶、さらには銅酸化物体においても存在することが判明してきた。

しかし、リング交換相互作用の効果による特徴的な磁性の理論的解明はなされていなかった。これまでの平均場近似およびスピン波近似に基づく理論（桃井、久保）では、多体交換相互作用自身の競合が磁気フラストレーションを生むことや、多体交換相互作用がスカラー・カイラル相関を引き起こすことが明らかになった。しかし、これらは2次元固体 ^3He 系で観測されている量子スピン流体状態を再現しておらず、リング交換系の磁性の半古典理論による記述が難しい事を示す。リング交換系はこれまでのフラストレート磁性体と異なり、その相互作用そのものに内蔵する特異な量子的プロセスにより新奇な量子状態を作り出す可能性があり、その理論的解明が待たれる。

2. 研究の目的

今研究では、磁性体において、リング交換が引き起こす量子ダイナミクスを取り入れた理論を構築し量子状態を記述し、リング交換が生む新奇な量子磁性状態の出現を探り、その特性を解明する。また、幾何学的フラストレーションとリング交換の共存により新奇な量子相が出現する可能性を理論的に明らかにする。特に、通常のスピン秩序はないが、多スピンの複合自由度からなる新奇な秩序（スピンネマティック秩序）を持つ量子相が出現する可能性を探る。

また、固体中の粒子の量子力学的な交換相互作用の特異な効果により新奇な状態がこれまでいくつか発見されてきているが、本研究では粒子が位置に関して並進対称性

を破った固相にありながらコヒーレントな移動をする量子固体の特徴を明らかにし、そのような状態でのリング交換相互作用の効果について明らかにする。

3. 研究の方法

(1) 量子スピンモデルにおける新奇磁性相の探査

①固体ヘリウム3が示す磁性を理解するために、多体スピンのリング交換モデルを理論的に調べた。低温におけるスピン状態の解析に、古典モンテカルロ計算、分子場近似、スピン波展開、有限系の厳密対角化法を用いた。

②特に、固体ヘリウム3に対応する三角格子リング交換モデルの強磁性2体相互作用と反強磁性的多体リング交換相互作用の競合が強い領域では、強磁性状態におけるマグノン不安定性を解析し、スピンネマティック相が現れる可能性を探った。さらに、量子スピン流体相、スピンネマティック相、カイラル相の出現可能性を追求するために、有限系の厳密対角化法により低励起状態の性質を調べた。これら各相の安定性を、厳密対角化法とスピン波展開法を用いて、研究した。

③フラストレートした磁性体における新奇な磁性状態の探査を行うために、厳密対角化法、密度行列繰り込み群法、古典モンテカルロ法を適宜使い、基底状態および磁化過程を調べた。

(2) スピンネマティック状態、磁気多極子状態の研究

①スピンネマティック状態を理論的に記述するために、有効モデルであるスピン1の双1次・双2次モデルを用いた。スピンネマティック状態のスピン波展開を行い、低エネルギー特性を調べた。

②スピン $1/2$ のスピン系における量子スピン液体およびスピンネマティック状態の特性を研究するために、フェルミオン表示およびボゾン表示を用いて、平均場理論を構築した。磁気励起構造や低温における熱力学的振る舞いを調べた。

③1次元ジグザグ鎖上のスピンモデルを用い、カイラル秩序相及びスピンネマティックなどの多極子相の競合を記述する低エネルギー有効理論を構築した。この有効理論からの予想と密度行列繰り込み群法により数値的に得られる相関関数の振る舞いを比較・解析した。

(3) 量子ダイナミクスの研究

今研究で見出された量子相の理論と実験との比

較を行うために、励起状態の性質を、厳密対角化法と場の理論的手法を併用して、調べた。また、エネルギー構造のみならず各種の応答、あるいは外部磁場の掃引などを通して明らかにするために、動的振る舞いを少数系の厳密対角化法を用いて、調べた。さらに、量子ダイナミクスに現れる磁気フラストレーションの効果を数値計算により調べた。

(4) 遍歴粒子系の磁性及び超固体の研究

① 電子系の磁性における電荷揺らぎの効果

電荷揺らぎの効果を調べるため、遍歴電子系における磁性を調べた。クラスタ動的平均場理論を用い、数値的に解析し、金属-絶縁体転移およびモット絶縁相におけるスピン液体状態の実現可能性を調べた。

② 遍歴粒子系における磁性

遍歴電子系の強磁性を有限系の厳密対角化法を用いて、研究した。また、光格子上の冷却原子系の磁性を理解するために、スピンの大きさが $1/2$ より大きな粒子系に対する有効模型の数値計算を行った。

③ ボゾン系における量子固体

超流動固体の出現条件を、格子の形態・ハードコアの効果・次元依存性などについてコンピュータシミュレーションを用い調べた。さらに、ヘリウム固相での超流動性における、系の不均一性の効果や固相との界面状況についてミクロな立場から数値計算を行った。

4. 研究成果

(1) 多体交換模型が引き起こす新奇な磁気状態

① 三角格子多体スピン交換模型を用いた固体ヘリウム3の磁性理論 (桃井、久保)

固体³He薄膜において観測された量子スピン液体的振る舞いを理論的に理解するために、三角格子上のリング交換模型 (多体スピン交換模型) における量子スピン状態を研究した。強磁性的2体相互作用と4体相互作用が競合する系では、スピン秩序は持たないが隠れた8重極秩序を伴う量子スピン液体的な状態が現れることを明らかにした。また、リング交換模型をスピン6体相互作用まで考慮して調べ、磁場中の磁気相図を得た。ヘリウム3において実現するパラメータ領域では、マグノンが束縛対を作ることにより、ネマティック秩序が形成され易いことを示した。また、磁化 $1/4$ に狭い $1/2$ プラトーが現れることを理論的に再現した。これらの結果は実験結果とよく合っているため、今後、実験で観測された

量子スピン液体的状態とスピンネマティック状態の関係の解明が待たれる。

また、反強磁性領域で実現する 120 度スピン構造が、半古典近似では不安定化し、6副格子状態に相転移することを示した。

② BCC 格子中の磁場中相図 (久保)

磁場中の bcc 固体ヘリウム3に現れる CNAF 磁気秩序相と高温常磁性相間の相転移を、古典リング交換スピン系のシミュレーションにより調べ、実験結果とよく合う相図を得た。

③ 電子の多体交換相互作用の導出 (常次)

強束縛近似に基づいて遷移金属化合物における、電子の多体交換相互作用の導出を行った。特に、Ni イオンが eg 軌道に2電子を持つ場合について電子ホッピングとの関係が導出された。

(2) フラストレート磁性体におけるスピンネマティック状態

① スピン $1/2$ の2次元正方格子系 (桃井)

2次元フラストレート磁性体における量子スピン液体的な磁性相の出現可能性を、正方格子上の J_1 - J_2 模型を用いて研究した。その結果、スピン秩序のないスピン液体的な量子相が強磁性相に隣接し現れる事を見出し、その発現機構を明らかにした。この状態は通常のスピン秩序は持たないが2スピン自由度からなる4極子秩序を持つスピンネマティック状態である。

さらに、強磁性的な最近接相互作用を持つ層状銅酸化物が示す磁性を理解するため、 $S=1/2$ 正方格子 J_1 - J_2 - J_3 模型の磁性を調べた。ネマティック相および反強磁性相と隣接スパイラル相が出現し、これらは高磁場領域においてスピンネマティック状態に転移することを示した。

② スピン $1/2$ の1次元ジグザグ鎖 (桃井)

ジグザグ鎖上のスピン模型における磁気多極子相の探索を行った。強磁性相互作用と反強磁性相互作用が競合する状況において、相互作用に依存して、ネマティック相とさらに高次の多極子相が逐次出現することを見出した。さらに、これらネマティック相および多極子相の実験的検証のために、多極子液体相におけるスピン動的構造因子の特徴及び核磁気緩和率 $1/T_1$ の特徴的な減衰を明らかにした。

③ スピンネマティック状態の理論 (桃井、常次)

強磁性相互作用を含むスピン $1/2$ の2次元フラストレート磁性体に現れるスピンネマティック状態を記述するために、フェルミオン表示を用いて平均場理論を構築した。その結果、スピンネマティック状態は、スピン三重項 RVB 状態で記述できることを示した。

また、擬1次元物質 LiCuVO_4 の高磁場領域におけるスピンネマティック相の可能性を吟味するため、マグノン束縛状態の波動関数理論を展開し、飽和磁場付近においてネマティック相

が安定化されることを確かめた。

④ スピン1三角格子反強磁性体 (常次)

スピン1の三角格子物質 NiGa_2S_4 を実験との協力により研究し、低温の磁気的および熱的性質が磁気長距離秩序のないスピン液体状態の実現を示唆することを指摘した。また、この相において、スピン4極子の反強秩序の存在する可能性を理論的に研究した。この新しい量子相におけるボーズ型素励起を計算し、比熱や静的・動的スピン相関を求め、実験結果が半定量的に説明できることを示した。

(3) 様々なフラストレート反強磁性体に現われる特異現象の研究

① カゴメ格子、パイロクロア格子の飽和磁場近傍における相転移 (常次)

カゴメ格子系において磁場下の新奇なマグノン結晶相への転移の臨界現象を明らかにした。また、チェッカーボード格子とパイロクロア格子上の飽和磁場付近における熱力学を研究した。導出した有効モデルのモンテカルロ計算により縮退が残る基底状態マニフォールドへの有限温度相転移が起こることを示した。

② ジグザグ鎖上のスピン1反強磁性体 (常次)

ジグザグ鎖上のスピン1反強磁性体において $\text{SU}(3)$ 一重項により記述される3量体相を数値的に発見し、量子相転移の普遍クラスを求めた。

③ 部分ライングラフ系 (久保)

蜂の巣格子の部分ライングラフ上では、 $1/2$ 磁化プラトー状態内での量子相転移を、正方格子の部分ライングラフ上の古典模型では、低温まで揺らぎが残ることを数値計算により見出した。

(4) 幾何学的フラストレーションを有する電子系の研究

① カゴメ格子におけるモット転移と磁性 (大橋、常次)

フラストレート電子系における金属絶縁体転移と磁性を理解するために、カゴメ格子遍歴電子系を、拡張された動的平均場近似法を用いて研究した。その結果、この系において金属絶縁体転移の存在を初めて示すと共に、転移点近傍で新奇な1次元準長距離スピン相関が発達することを発見した。

② 空間的異方性のあるカゴメ格子 (大橋)

空間的異方性のあるカゴメ格子ハバード模型におけるモット転移の振る舞いを、セル型動的平均場理論を用いて調べた。モ

ット転移近傍において準粒子バンドが平坦になり、フェリ磁性的スピン相関が発達することを明らかにした。

③ 異方的三角格子系におけるモット転移と磁性 (大橋、桃井、常次)

モット転移近傍での電荷ゆらぎ及び磁気揺らぎの振る舞いを、空間的異方性を持つ三角格子電子系において研究した。磁気フラストレーションの効果により有限温度の金属絶縁体転移がリエントラントな振る舞いをすること、モット転移点近傍にスピン無秩序絶縁体が現われることを示した。

④ 金属強磁性 (久保)

格子の幾何学的構造により平坦なエネルギーバンドを持つ電子系における金属強磁性を調べた。また、モット絶縁相における新奇な磁性状態の実現を明らかにした。

⑤ 計算手法の開発 (大橋)

幾何学的フラストレーションを持つ系における金属-絶縁体転移を研究する新手法として線形化動的平均場理論を構築した。この方法を次近接ホッピングのあるハバード模型に適用した。

⑥ 異方的三角格子上のスピンレスフェルミオン系 (久保)

異方的三角格子上のスピンレスフェルミオン系における金属相、ダイマーモット相および電荷秩序相の間の転移を厳密対角化法により調べ、相図を得た。

(5) スピנקロスオーバー、量子スピンドイナミクス (宮下)

① 分子磁性体の基底状態において、各原子のスピン配位が遍歴的になる新奇な状態を見つけ、量子相転移機構やスピנקロスオーバーを研究した。また、相転移における弾性力の効果を考慮した新しい機構を提唱した。さらに、光誘起動的相転移を研究した。

② フラストレート系でのエントピー誘起の遅い緩和機構、非単調な緩和機構の研究を進めた。

③ 動的な外場への応答を計算するため励起エネルギー構造を求める計算手法を開発し、ダイマー結合系の磁化過程や、横磁場イジング模型のダイナミクスを研究した。

(6) ボーズ粒子系の超固体 (宮下)

非対角秩序と対角秩序の出現条件の競合下で、両者が共存する超固体状態について研究した。ハードコアモデルでは相互作用にフラストレーションがあることが重要な条件であるのに対し、ソフトコアモデルではフラストレーション無しでも超固体が実現でき、そこでは超流動成分の周期性に興味深い相互作用依存性が現れることを発見した。また、3次元系における超固体状態の数値計算を行い、これまで知られていない

低濃度での超固体出現を発見した。

(7) 冷却原子系の理論研究 (宮下)

- ①光格子系でのポテンシャル中の粒子移動における量子効果を調べた。さらに、量子相関の観測に関する理論的研究を行った。
- ②光格子上での格子変形による長岡強磁性に由来するモット・長岡強磁性相間の遷移のダイナミクスを調べた。また、スピンの断熱的变化の機構を明らかにした。
- ③電子系における長岡の遍歴強磁性出現機構を拡張し、冷却原子系での新しい遍歴磁性相の性質を調べた。

(8) 超伝導の理論研究 (常次)

空間変調する超伝導状態の現象論に基づく解析を行い、電荷密度・スピン密度波が誘起される条件を明らかにした。また、空間構造の転位や渦などの欠陥を調べた。さらに、 β パイロクロア化合物における非調和格子振動に誘起される超伝導において、振動の非調和性と超伝導転移温度および準粒子繰込み因子の関係を定量的に示した。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 79 件)

- ① N. Shannon, T. Momoi, P. Sindzingre, Nematic Order in Square Lattice Frustrated Ferromagnets, Physical Review Letters **96**, 027213-1-4 (2006), 査読有
- ② T. Momoi, P. Sindzingre, N. Shannon, Octupolar Order in the Multiple Spin Exchange Model on a Triangular Lattice, Physical Review Letters **97**, 257204-1-4 (2006), 査読有
- ③ T. Momoi (4名中3番目), Vector chiral and multipolar orders in the spin-1/2 frustrated ferromagnetic chain in magnetic field, Physical Review B **78**, 144404-1-19 (2008), 査読有
- ④ R. Shindou, T. Momoi, SU(2) slave-boson formulation of spin nematic states in S=1/2 frustrated ferromagnets, Physical Review B **80**, 064410-1-12 (2009), 査読有
- ⑤ C. Yasuda, D. Kinouchi, K. Kubo, Spin-Wave Theory of the Multiple-Spin Exchange Model on a Triangular Lattice in a Magnetic Field: 3-sublattice Structure, Journal of the Physical Society of Japan **75**, 104705-1-8 (2006), 査読有
- ⑥ M. Takahashi, K. Kubo, Limitation of Mean Field Approximation for Carrier States and Ferromagnetism in Diluted Magnetic Semiconductors, Journal of the Physical Society of Japan **74**, 1642-1643 (2005), 査読有
- ⑦ K. Kubo (5名中2番目), Flat-Bands on Partial Line Graphs -Systematic Method for Generating Flat-Band Lattice Structures-, Journal of the Physical Society of Japan **74**, 1918-1921 (2005), 査読有
- ⑧ S. Miyashita (4名中3番目), Dynamical aspects of photoinduced magnetism and spin-crossover phenomena in Prussian blue analogs, Physical Review B **72**, 064452-1-7 (2005), 査読有
- ⑨ S. Miyashita (4名中4番目), Simple Two-Dimensional Model for Elastic Origin of Cooperativity among Spin State of Spin-Crossover Complexes, Physical Review Letters **98**, 247203-1-4, 査読有
- ⑩ K. Boukheddaden, M. Nishino, S. Miyashita, Molecular Dynamics and Transfer Integral Investigations of an Elastic Anharmonic Model for Phonon-Induced Spin Crossover Physical Review Letters **100**, 177206-1-4 (2008), 査読有
- ⑪ S. Miyashita (4名中4番目), Monte Carlo Simulation of Pressure-Induced Phase Transitions in Spin-Crossover Materials, Physical Review Letters **100**, 067206-1-4 (2008), 査読有
- ⑫ H. Tsunetsugu, M. Arikawa, Spin nematic phase in S=1 triangular antiferromagnets, Journal of Physical Society of Japan **97**, 066401-1-4 (2006), 査読有
- ⑬ M. E. Zhitomirsky, H. Tsunetsugu, Lattice gas description of pyrochlore and checkerboard antiferromagnets in a strong magnetic field, Physical Review B **75**, 224416-1-10 (2007), 査読有
- ⑭ K. Hattori, H. Tsunetsugu, Effective Hamiltonian of a three-orbital Hubbard model on the pyrochlore lattice: Application to LiV₂O₄, Physical Review B **79**, 035115-1-25 (2008), 査読有
- ⑮ D. F. Agterberg, H. Tsunetsugu, Dislocations and vortices in pair-density-wave superconductors, Nature Physics **4**, 639-642 (2008), 査読有
- ⑯ T. Ohashi, H. Tsunetsugu, N. Kawakami, Mott Transition in Kagome' Lattice Hubbard Model, Physical Review Letters **97**, 066401-1-4 (2006), 査読有
- ⑰ T. Ohashi, T. Momoi, H. Tsunetsugu, N. Kawakami, Finite temperature Mott transition in Hubbard model on anisotropic triangular lattice, Physical Review Letters

100, 076402-1-4 (2008), 査読有

[学会発表] (計 86 件)

- ① 桃井 勉, Octupolar order in the multiple spin exchange model on a triangular lattice, Workshop on Highly Frustrated Magnets and Strongly Correlated Systems: From Non-Perturbative Approaches to Experiments, 2007年8月16日, Trieste, Italy
- ② 桃井 勉, Multi-polar orders in spin-1/2 frustrated magnets (招待講演), Workshop on Topological Aspects of Solid State Physics, 2008年6月23日, 京都
- ③ 桃井 勉, Nematic and multipolar orders in spin-1/2 frustrated magnets, International Workshop on Quantum Critical Phenomena and Novel Phases in Superclean Materials, 2009年1月13日, Honolulu, USA
- ④ 桃井 勉, Nematic spin liquids in frustrated magnets (招待講演), UK-Japan Joint Workshop, 2010年2月23日, Bristol, UK
- ⑤ 宮下 精二, Dynamical Realization of Nagaoka ferromagnetism in an optical lattice (招待講演), 5th International Workshop on Nanomagnetism and Superconductivity, 2009年7月9日, Coma-Ruga, Spain.
- ⑥ 宮下 精二, Realization of the mean-field universality class in spin-crossover material (招待講演), International Symposium on Molecular Materials (MOLMAT2008), 2008年7月9日, Toulouse, France.
- ⑦ 宮下 精二, Critical properties of the spin-crossover phase transition induced by an elastic interactions (招待講演), International Workshop, Phase transition and Dynamical properties of Spin Transition Materials (PDSTM2008), 2008年1月16日, Bordeaux, France
- ⑧ 宮下 精二, Phase transition and dynamics in molecular materials (招待講演), JSPS-DSTAsia Academic Seminar on Molecular and Supramolecular Materials with Designes Functions, 2007年2月24日, Pune, India
- ⑨ 常次 宏一, A Theory of "Spin Liquid Phase" in Triangular Antiferromagnets (招待講演), Miniworkshop on Strongly Correlated Electron Systems, 2005. 11. 4, Hong Kong

- ⑩ 常次 宏一, Spin Nematic Order in Quantum Frustrated Magnets (招待講演), International Conference on Strongly Correlated Electron System 2007, 2007. 5. 16, Houston, USA
- ⑪ 常次 宏一, Strongly Correlated Electrons on Frustrated Lattices (招待講演), Highly Frustrated Magnetism 2008, 2008. 9. 8, Braunschweig, Germany
- ⑫ 常次 宏一, Strongly Correlated Electrons with Geometrical Frustration (招待講演), APCPT-MPIPKS Seminar and Workshop, "Topological Order: From Quantum Hall Systems to Magnetic Materials", 2009. 7. 13, Dresden, Germany

[図書] (計 4 件)

- ① 宮下精二、岩波書店、量子スピン系 (2006) 138 ページ
- ② 久保健、田中秀数、朝倉書店、朝倉物性シリーズ「磁性 I」 (2008) 235 ページ
- ③ D. Poilblanc, H. Tsunetsugu, Springer Verlag, Highly Frustrated Magnetism", Lectures from SISSA International School (2010) 25 ページ

6. 研究組織

(1) 研究代表者

桃井 勉 (Momoi Tsutomu)

独立行政法人理化学研究所・古崎物性理論研究室・専任研究員
研究者番号: 80292499

(2) 研究分担者

久保 健(Kubo Kenn)

青山学院大学・理工学部・教授
研究者番号: 30015862

宮下 精二(Miyashita Seiji)

東京大学・大学院理学系研究科・教授
研究者番号: 10143372

常次 宏一(Tsunetsugu Hirokazu)

東京大学・物性研究所・教授
研究者番号: 80197748

(3) 連携研究者

大橋 琢磨(Hashi Takuma)

大阪大学・大学院理学研究科・助教
研究者番号: 20452419