

令和元年5月31日現在

機関番号：22604

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2018

課題番号：26400399

研究課題名(和文)パイロクロア格子が創出する新奇スピン液体相の物性研究

研究課題名(英文)A Study on Novel Spin Liquid Phases Emerging on the Pyrochlore Lattice

研究代表者

大塚 博巳(Otsuka, Hiromi)

首都大学東京・理学研究科・助教

研究者番号：10254145

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：パイロクロア格子が創出する新奇スピン液体相の物性研究と題して行われた本研究では物質として主にスピナイスと呼ばれる希土類化合物 $R_2Ti_2O_7$ ($R=Dy, Ho$) を念頭に置き、その基底状態の持つ巨視的縮退に起因する新奇な現象に注目した。具体的には $[111]$ 磁場下で実現される二次元スピン液体相のAC磁気応答の実験結果に対する理論的考察、スピン液体相に対する効率のよいモンテカルロ法の開発およびその双極子相互作用を持つ場合へのアルゴリズムの拡張、更に、磁性イオンを非磁性イオンで置換した場合のスピン液体相に対する希釈効果を解析的数値的に議論し明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

学術的意義について：AC磁気応答の研究ではAC帯磁率に対するスケーリング則を提案したが、それは二次元スピン液体相が普遍的に示すもので広範な系を対象とした関係式である為、スピナイスでの実験的検証も含め注目されている。スピナイスに対するモンテカルロ法の研究では臨界減速の起きないクラスターアルゴリズムを提案しており、同系の数値研究が大幅に進むと期待される。スピナイスに対する希釈効果の研究ではベータ近似の一種であるHusimi-Cactus近似を用いてフラストレーション系を定量的に取り扱えることを確認できた。このことは今後の研究に対して重要な意義を持つ。

研究成果の概要(英文)：In this research project, we have investigated the so-called spin ice representing the spin degrees of freedom of rare-earth ions in the compounds such as $R_2Ti_2O_7$ ($R=Dy, Ho$); in particular we have focused on novel phenomena stemming from the macroscopic degeneracy in their ground states. We proposed the scaling form for the ac magnetic susceptibility observed in the so-called Kagome ice, which will be compared with the experimental results in future.

Also, we proposed a new type of Monte Carlo algorithm which is free of the critical slowing down problem in the ordinary single-spin flip algorithms. Further, we investigated the diluted spin ice models by analytical and numerical methods, and then clarified that the Bethe approximation works well also for the diluted spin ice. The research for quantum spin systems on the pyrochlore lattice is currently under progress.

研究分野：物性基礎論・統計力学

キーワード：スピナイス モンテカルロ法 交流磁気応答 希釈効果

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19(共通)

1. 研究開始当初の背景

希土類化合物 $R_2Ti_2O_7$ の実験よりその基底状態にて残留エントロピーの存在が示唆されたことを契機に同物質を含むパイロクロア格子の古典および量子スピンの静的動的性質に多くの注目が集まっていた。 $R=Ho, Dy$ の場合は結晶場の効果によりイジングスピンによる記述が有効であり、残留エントロピーは水中のプロトン配置に関する縮退と幾何学的対応がありポーリングの評価式の値と極めて近いことから関連物質はスピニアイスと命名され基底状態およびアイスルールの破れを表すモノポールの励起状態の物性が精力的に調べられていた。

2. 研究の目的

初期の主な目的は、スピニアイスに[111]磁場を掛けることにより安定化されるカゴメアイスの有限温度でのAC磁気応答を明らかにすることであった。これは磁性の実験グループとの共同研究であり中性子散乱実験データに対する理論的解釈を与えることを目的としていた。また同時に $R=Yb$ などの場合の量子スピニアイス特有の励起を調べる為の数値手法の開発も目的としていた。後期の主な目的としてスピニアイスの低温での数値計算を効率的に行うMC法のアルゴリズムの開発が挙げられる。アイスルールにより縮退した状態空間は臨界状態にある為、MC計算には所謂臨界減速の問題がある。その解消について考察した。また $R=Ho, Dy$ の場合、磁気モーメントが大きい為、ダイポール相互作用が強く働く。これにより通常アルゴリズムでは効果的に計算出来ないことが知られていた。これを改善する為にMC法の再検討を行った。更に非磁性イオンで希釈されたスピニアイスの実験がなされており興味を持たれている。我々はそれとの比較を目的として物理量の希釈濃度依存性を解析的数値的手法を用いて議論した。

3. 研究の方法

AC磁気応答の理論を構築する際、その基底状態を記述する場の理論(二次元sine-Gordon模型)を出発点とした。温度と共に誘起される欠陥により基底状態の臨界性は失われ有限な相関長を持つ系となるが我々は欠陥の拡散運動に伴う磁気応答への寄与を有限な相関長を持つ欠陥の電荷相関関数より評価するアプローチを取った。MCアルゴリズムの研究ではパイロクロア格子を構成する四面体に着目し、その局所ボルツマン重みをグラフ重みで展開することによりクラスターアルゴリズムを考案し、その効率を調べた。更にダイポール相互作用については、スピニアイスの欠陥描像に基づきそれを欠陥の間に働くクーロン相互作用として表すことにより、特に低温にて欠陥密度が低くなった場合に効率の良いアルゴリズムとなるよう定式化した。希釈効果を調べる方法では、上述のクラスターアルゴリズムによるMC法に加え、ベータ近似の一種であるHusimi-Cactus近似を用いて解析計算を行い比較検討した。

4. 研究成果

主な発表論文のうち、⑤、④、②について以下に簡潔に纏める：

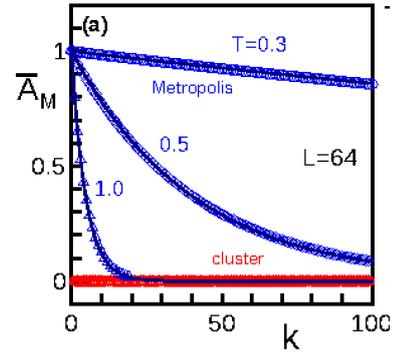
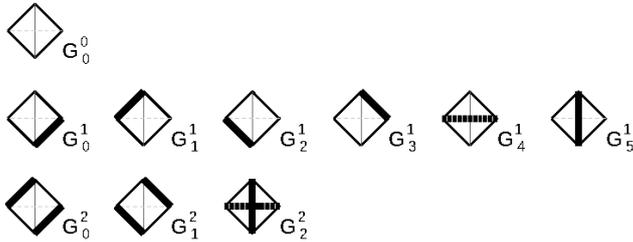
⑤ Cluster algorithm for Monte Carlo simulation of spin ice.

上述の通り、MCはスピニアイスの基底状態での多重縮退による臨界減速の問題を抱えている。我々はパイロクロア格子の四面体を単位として局所ボルツマン重みをグラフ重みで分解する方程式

$$w(S) = \sum_G \Delta(S, G) W(G)$$

を解いた。但、 $w(S)$ は局所ボルツマン重みで S はスピン状態、 $W(G)$ はグラフ重みで G はグラフの種類(下図参照)を表す。 Δ はスピン状態とグラフの間の整合性を表すファクターである。これにより系はパイロクロア格子のループおよびストリング状のクラスターに分解され、それらはお互いに無相関となる。MCでは $W(G)$ に従って四面体にグラフを配置しクラスター化されたスピンを一度に反転する事になるので通常の1スピンの反転とは異なるマルコフ鎖となる。効率を調べる目的で系の磁化の自己相関関数を

調べたものを図に示した(横軸はMCステップ)。これから新しいループ-ストリングアルゴリズムによる計算は(赤印)通常のアルゴリズムによる計算結果(青印)に比べ格段に速く緩和しているのが分かる。さらに温度を下げてその傾向は変わらないことを確認できた。これより、この研究で提案したMC法は極めて効率の良いものであり、スピンアイスの研究手法のスタンダードとなることが期待出来る。

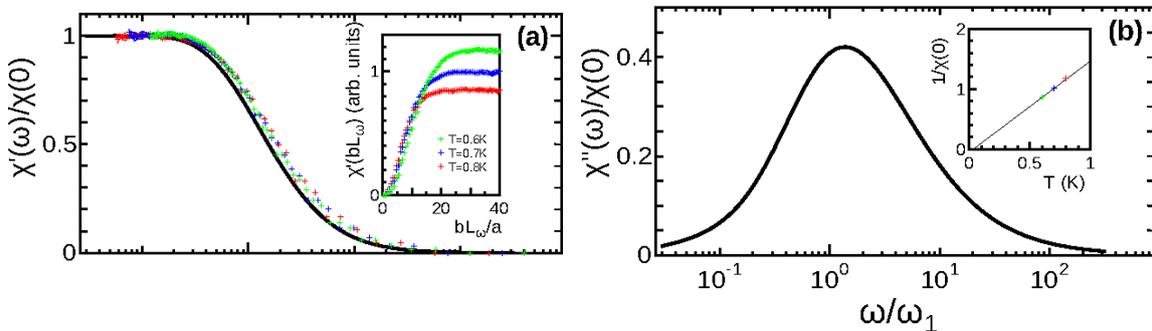


④ Scaling ansatz for the ac magnetic response in two-dimensional spin ice

[111]磁場による磁化過程に現れる飽和磁化の1/3磁化プラトー領域では三角格子のスピンは磁化されているがカゴメ面のスピン状態の縮退が解けておらず所謂カゴメアイスと呼ばれる二次元スピン液体状態が形成される。そのカゴメ面内にAC磁場を加えその磁気応答を見る実験が行われている。我々は実験データを説明するために磁気応答と欠陥のもつ電荷の相関関数を結びつける関係を考察し次のようなスケージングの関係式を提案した。角周波数を ω 、拡散係数をDとしてまず1周期での欠陥の拡散距離 $L_\omega=(D/\omega)^{1/2}$ を定義する。これを用いて電荷相関関数の相関長 ξ との比を $\gamma=bL_\omega/\xi$ とするとAC帯磁率の実部虚部はそれぞれ

$$\chi'(\omega)/\chi(0)=1-\gamma^3[K_1(\gamma)+K_3(\gamma)]/8, \quad \chi''(\omega)/\chi(0)=\gamma^2[G(\gamma^4;a)-G(\gamma^4/b)]/8\pi$$

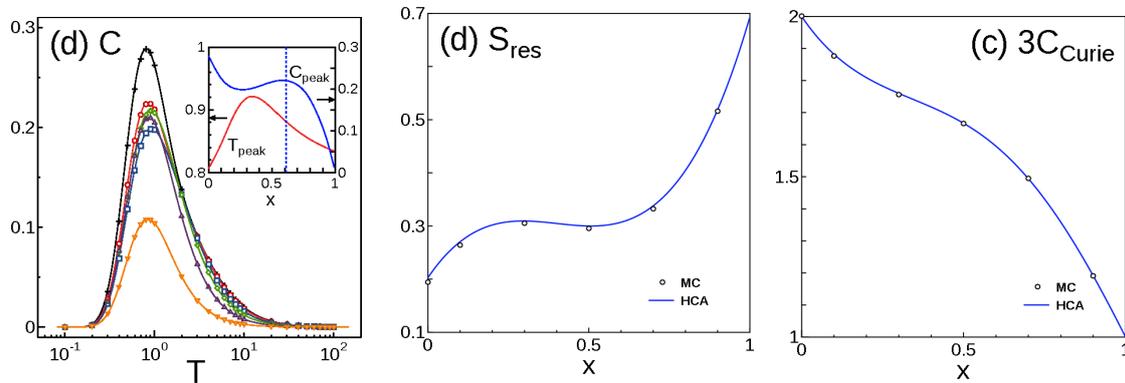
与えられる。ここでKは第2種変形Bessel関数、GはMeijerのG関数であり実部と虚部はKramers-Kronig関係式で結ばれている。これらのプロットを以下に示す。特に χ'' は $\gamma=1$ 近傍、つまり電荷相関関数の相関長と1周期あたりの拡散距離が等しくなる条件の近傍でピークを持つことを明らかにできた。実験データとの比較が待たれる。



② Husimi-cactus approximation study on the diluted spin ice

$R_2Ti_2O_7$ の磁性イオン R^{3+} を Y^{3+} で置換した希釈スピンアイスの実験がなされている。我々はそれと比較すべく基底状態および有限温度での物理量の特に希釈濃度(x)依存性を調べた。Husimi-Cactus近似により得られた比熱の解析結果とループ-ストリングアルゴリズムを希釈系に拡張することにより行われたMCの比較を下左図に示す(横軸は温度)。これよりHusimi-Cactus近似が希釈濃度によらず極めて正確

な解析であることが明らかとなった。また下中図に残留エントロピーの x 依存性を示す。解析計算から、我々は Ke らにより与えられた所謂修正されたポーリングの残留エントロピーの表式を再導出することが出来たが、更にMCの比熱を積分することにより求めた残留エントロピーの値がその理論値とよく一致する事を明らかにした。これは実験データとも良く一致することを示している。またキュリー一定数の x 依存性(下右図)からは温度と同様希釈効果によっても協力的常磁性状態($3c=2$)から通常の常磁性状態($3c=1$)へのクロスオーバー現象が見られることが分かった。



5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計5件)

① P. Andriushchenko, K. Soldatov, A. Peretyatko, Y. Shevchenko, K. Nefedev, [Hiromi Otsuka](#), and Yutaka Okabe,

Large peaks in the entropy of the diluted nearest-neighbor spin-ice model on the pyrochlore lattice in a [111] magnetic field,

Phys. Rev. E 99, 022138 (2019).

<https://dx.doi.org/10.1103/PHYSREVE.99.022138>

② [Hiromi Otsuka](#), Yutaka Okabe, and Konstantin Nefedev,

Husimi-cactus approximation study on the diluted spin ice,

Phys. Rev. E 97, 042132 (2018).

<https://dx.doi.org/10.1103/PHYSREVE.97.042132>

③ [Hiromi Otsuka](#),

Loop-string algorithm for Monte Carlo simulations of dipolar spin ice

Phys. Rev. B 92, 134401 (2015).

<https://dx.doi.org/10.1103/PHYSREVB.92.134401>

④ [Hiromi Otsuka](#), Hiroshi Takatsu, Kazuki Goto, and Hiroaki Kadowaki

Scaling ansatz for the ac magnetic response in two-dimensional spin ice

Phys. Rev. B 90, 144428 (2014).

<https://dx.doi.org/10.1103/PHYSREVB.90.144428>

⑤ [Hiromi Otsuka](#)

Cluster algorithm for Monte Carlo simulations of spin ice

Phys. Rev. B 90, 220406® (2014).

<https://dx.doi.org/10.1103/PHYSREVB.90.144428>

[学会発表](計8件)

① International Conference on Magnetism (ICM2018) 2018年7月15--21日
(San Francisco, America)

H. Otsuka, Y. Okabe, and K. Nefedev:

Husimi-Cactus Approximation Study on the Diluted Spin Ice.

② 日本物理学会2017年秋季大会2017年9月24日 岩手大学 (上田キャンパス)

藤本雅文, 大塚博巳: 古典XY模型における二点相関関数:代数曲線を用いた解析

③ 日本物理学会第73回年次大会2017年3月25日 東京理科大学 (野田キャンパス)

藤本雅文, 大塚博巳:代数曲線を用いた格子模型の臨界現象の解析 II

④ 日本物理学会2016年秋季大会 2016年9月14日 金沢大学 (角間キャンパス)

藤本雅文, 大塚博巳:蜂の巣格子ポッツ模型における二点相関関数と普遍的代数曲線

⑤ 日本物理学会第70回年次大会 2015年 3月22日 早稲田大学 (早稲田キャンパス)

大塚博巳: クラスタールゴリズムのダイポールアイスへの適用

⑥ 日本物理学会第70回年次大会 2015年 3月22日 早稲田大学 (早稲田キャンパス)

藤本雅文, 大塚博巳:代数曲線を用いた格子模型の臨界現象の解析

⑦ 日本物理学会2014年秋季大会 2014年 9月7日 中部大学 (春日井キャンパス)

千枝光司, 大塚博巳, 岡部豊:

クラスタールゴリズムモンテカルロ法を用いたスピンアイスの数値的研究

⑧ 日本物理学会2014年秋季大会 2014年 9月7日 中部大学 (春日井キャンパス)

藤本雅文, 大塚博巳: ポッツ模型における二点相関関数と普遍的代数曲線 II: 高温相における解析

[図書](計0件)

[産業財産権](計0件)

[その他]

ホームページ等 <https://publons.com/researcher/2086855/hiromi-otsuka/>

6. 研究組織

(1) 研究分担者なし

(2) 研究協力者

研究協力者氏名: 岡部豊

ローマ字氏名: OKABE, Yutaka

研究協力者氏名: 門脇広明

ローマ字氏名: KADOWAKI, Hiroaki

研究協力者氏名: 野村清英

ローマ字氏名: NOMURA, Kiyohide

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。