

令和元年6月11日現在

機関番号：18001

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2016～2018

課題番号：16K05479

研究課題名（和文）スピン-フォノン間相互作用のある系におけるランダムネス誘起磁気秩序の研究

研究課題名（英文）Randomness-Induced Magnetic Order in the System with the Spin-Phonon Interaction

研究代表者

安田 千寿 (YASUDA, Chitoshi)

琉球大学・理学部・准教授

研究者番号：20398564

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：低温で非磁性なスピンパイエルス物質に不純物をドーピングすると反強磁性長距離秩序が発現する。本研究課題では、格子の自由度をもつ一次元鎖が弱い鎖間相互作用で結合した二次元スピン1/2反強磁性ハイゼンベルク模型の希釈効果を計算物理学的手法で調べることにより、従来の理論的解析では説明できなかった実験結果の説明を実現した。また、関連する有効模型となる多スピン交換模型の基底状態や低励起状態も解析的手法により調べた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

スピンパイエルス物質における不純物誘起反強磁性長距離秩序の問題は、顕著な量子揺らぎの効果を示す磁性とランダムネスが関連した問題であり、十分な理解が得られていない課題の一つである。本研究の成果により、不純物誘起反強磁性長距離秩序をもつスピンパイエルス物質に誘起する磁気モーメントの位置が明確になり、実験と理論の結果の一致を得た。さらに、どのような物質でどこに磁気モーメントが誘起する可能性があるかを予想しており、今後の研究に新たな広がりをもたらすものとなっている。

研究成果の概要（英文）：The antiferromagnetic long-range order is induced by impurity doping in the spin-Peierls compounds in which a nonmagnetic state is realized at low temperatures. In the present work, we investigated the two-dimensional spin-1/2 antiferromagnetic Heisenberg model consisting of one-dimensional chains connected by a weak interchain interaction using the computational physics method. The one-dimensional chain is coupled to lattice degrees of freedom. The theoretical result gave an explanation of the experimental result, which cannot be achieved by previous researches. In addition, we investigated analytically ground and low-excited states of the multiple-spin ring exchange model which is related to an effective model for the spin-Peierls system.

研究分野：物性理論

キーワード：ランダム量子スピン系 スピンパイエルス 格子の自由度 フォノン 反強磁性長距離秩序 量子モンテカルロ法 不純物 多スピン交換相互作用

1. 研究開始当初の背景

本研究課題では、ハイゼンベルク模型などスピン演算子からなる模型(量子スピン系)で記述される磁性体に着目する。つまり、強い電子相関のため絶縁体となっている磁性体を考える。このような磁性体における不純物誘起磁気秩序の研究として盛んに研究されているのが、スピンパイエルス物質 CuGeO_3 における不純物誘起反強磁性長距離秩序の研究である。スピンパイエルス物質とは、スピン-格子間相互作用により低温で自発的に格子が歪み、量子力学的なシングレットダイマーからなる状態になる物質である。不純物をドーブする前のこの系を非不純物系と呼ぶ。非不純物系をボンド交替反強磁性ハイゼンベルク模型とし、不純物をサイト希釈とみなした理論的研究などが多くなされ、その発現機構が明らかにされている。つまり、シングレットを形成していたスピン対が不純物により壊されることにより、複数のサイトに広がる磁気モーメントが生じ、それらがシングレット対を介して相関することで反強磁性長距離秩序が無限小の希釈濃度で誘起する[1]。ここで生じる磁気モーメントを「有効スピン」と呼ぶ。また、同じ模型のボンド希釈効果も研究されており、有効スピんに作用する有効相互作用が二種類存在し、それらの競合により反強磁性長距離秩序が誘起する希釈濃度の値が変化することが分かっている[2]。

スピンパイエルス物質 CuGeO_3 における不純物効果の研究には、未解決の問題がある。有効スピンが不純物の近くには誘起していないことが核磁気共鳴や核四重極共鳴の実験により指摘されていることである[3]。古典的格子の自由度と結合した端のある反強磁性ハイゼンベルク鎖の数値的研究から、ダイマーパターンの再構成が起こり、有効スピンの鎖の中央に誘起する可能性があることが確認されている。しかしながら、有効スピンの存在しても、実際に反強磁性長距離秩序が実現するとは限らない。有効スピンの鎖の中央に誘起する場合、有効スピンの広がり長距離に渡り、有効スピンの局在性が劣る。そのため、シングレット対を介した有効相互作用という描像が成り立たない可能性がある。この問題を解決する試みが本研究に至る出発点となっている。

この問題を解決するためには、格子の自由度をもつ量子スピン系の不純物効果を反強磁性長距離秩序が出現しえる高次元系で調べなければならない。理論的研究における格子の自由度の扱いかたには、古典的に扱う方法と量子的なフォノンとして扱う方法がある。フォノンと結合した量子スピン系において特に興味深い点は、非不純物系において、低温で様々な状態が実現することである。上述のダイマーだけでなく、テトラマーをもつ状態や不整合な状態などフラストレーション系で現れる状態である[4, 5]。上述したボンド交替模型が有効なのは、フォノンの振動数が小さく、最近接スピン-フォノン間相互作用だけがある場合である。また、ダイマー状態が実現するような非不純物系においてサイト希釈した場合、鎖間相互作用を平均場近似で考慮すると、有効スピンの希釈サイト近傍に束縛される結果が得られている。この場合も、磁気秩序の有無の評価まではなされていない。

フォノンと結合した量子スピン系において、フォノンの自由度をトレースアウトすると、多スピン交換相互作用を含む量子スピン系を記述する有効ハミルトニアンが得られる。多スピン交換相互作用を含む系で特に有名な物質は固体ヘリウムである。固体ヘリウム3薄膜では低温で量子スピン液体状態も確認されており、その物性に興味を持たれている。しかしながら、強いフラストレーションや複雑な相互作用の存在のため、有効な理論的研究手法がないのが現状である。そこで、定性的な議論や範囲を限った議論のために、分子場近似やスピン波理論による研究がなされている。

2. 研究の目的

本研究課題の目的は、スピンパイエルス物質に代表される格子歪みを伴う磁性体における不純物効果を明らかにすることである。特に、不純物誘起磁気秩序の発現機構を詳細に調べたい。その発現機構は、非不純物系の状態に大きく依存している。例えば、スピンシングレットダイマーからなる状態の場合、非磁性不純物をドーブすると、不純物の隣に有効スピンの誘起し、それらがスピンシングレット対を介して相互作用することにより反強磁性長距離秩序が発現すると考えられている。格子の自由度やスピン-フォノン間相互作用も考慮に入れると、非不純物系の状態として、パターンの異なるダイマーやテトラマー(四量体)をもつ状態、不整合な状態など多様な状態が実現する。本研究の目的は、それら多様な状態において、不純物効果を含むランダムネスの効果により磁気秩序がどのように発現するかを理論的に明らかにすることである。特に、スピンパイエルス物質においてまだ理論と実験の結果の一致を得ていない不純物誘起有効スピンの誘起位置とその誘起位置と反強磁性長距離秩序の発現の有無の関係について明確な結論を得たい。

3. 研究の方法

本研究課題では、スピンパイエルス物質で実験的に観測される不純物誘起反強磁性秩序の起源となる有効スピがどこに誘起するかを調べ、さらに、実際に基底状態において反強磁性長距離秩序が誘起するかを調べる必要がある。そのためには、格子歪みと鎖間相互作用を考慮した理論模型を考えなければならない。本研究では、その模型として、格子の自由度と結合した $S=1/2$ スピン鎖が鎖間スピン相互作用で結合した二次元反強磁性ハイゼンベルク模型を考える。また、不純物の効果をサイト希釈とボンド希釈として取り入れる。この模型における従来の理論的研究では、鎖間相互作用を平均場近似で取り入れたが、その結果は有効スピンの位置に関する実験結果と一致しない。そのため、鎖間相互作用を正面から取り入れる必要がある。そこで、本研究課題では、格子の自由度を自己無撞着に計算する方法と量子モンテカルロ法[6]を組み合わせた方法を採用した。ただし、格子の自由度の自己無撞着計算において、二次元系で精度の良い結果を導くためには、極めて大規模な計算を必要とし、現在の計算環境では難しい。そのため、格子歪みに対する鎖間方向の希釈効果は小さいと仮定し、一次元スピン鎖内で自己無撞着に格子歪みを計算、評価する。

また、本研究課題では、格子の自由度を量子フォノンとみなした場合の有効ハミルトニアンである多スピン交換模型の理論的研究も行った。定性的な性質を広いパラメータ領域で調べるために分子場近似を、さらに、量子揺らぎの効果を調べるためにスピン波理論を採用した。

4. 研究成果

本研究課題では、不純物誘起反強磁性長距離秩序をもつスピンパイエルス物質の模型として、格子の自由度と結合した $S=1/2$ 二次元反強磁性ハイゼンベルク模型を考え、この模型におけるサイト希釈とボンド希釈効果を、大規模な量子モンテカルロシミュレーションを行うことにより調べた。特に、鎖間相互作用を、従来の平均場近似的取り扱いと異なり、スピン間相互作用として近似なしに取り入れている。最初に、有効スピが希釈サイトや希釈ボンドの近くに誘起する場合と希釈部分の間に誘起する場合の二通りの格子歪みパターンを仮定し、それぞれの基底状態エネルギーを比較した。その結果、弾性定数が大きいほど、鎖間相互作用が小さいほど、希釈濃度が大きいほど、有効スピが、希釈部分の近くではなく、希釈部分の間に誘起することが分かった。実験的には、現在、 $\text{CuGe}_{1-x}\text{Si}_x\text{O}_3$ におけるある希釈濃度において、有効スピが不純物近傍にないことが観測されているが、本研究の結果は、 $\text{CuGe}_{1-x}\text{Si}_x\text{O}_3$ や $\text{Cu}_{1-x}\text{Mg}_x\text{GeO}_3$ 等の低濃度領域や大きい鎖間交換積分を持つ物質で有効スピが不純物近傍に観測されることを予言するものでもあり、不純物誘起反強磁性長距離秩序の研究に新たな広がりをもたらすものとなっている。今後の実験的研究が待たれる状況である。

次に、一次元有限鎖における格子歪みパターンを自己無撞着に計算した結果、格子歪みは双曲線正接関数で表され、ソリトン型の磁気モーメントが有限鎖の端以外にも誘起されることを確認した。有限鎖の長さを大きくすると、ボンド交替系の格子歪みパターンに近づいていく。さらに、一次元鎖をスピン間相互作用で結合した二次元系において、希釈サイト間の格子歪みパターンとして一次元系の結果を用い、サイト希釈効果を調べた。その結果、反強磁性長距離秩序が発現することを確認した。この結果は、有効スピが希釈サイト近傍ではない位置に誘起されても、反強磁性長距離秩序が発現することを示している。

その反強磁性長距離秩序が絶対零度で誘起するメカニズムを詳細に調べるために、有効スピが希釈サイト近傍に誘起する場合の結果と比較したところ、反強磁性長距離秩序の大きさを示すスタッガード磁化の値が有効スピの位置に依存していることが分かった。有効スピが希釈サイト近傍にない場合の磁化の値のほうが、そうでない場合に比べて小さい。その原因を明らかにするために、誘起する有効スピの大きさや相関関数の分布、ダイマー秩序パラメータを調べた結果、有効スピが希釈サイトの近くではない場所に誘起する場合、有効スピ間の有効相互作用を担うダイマーが量子力学的揺らぎにより揺らいでいることが分かった。その結果として有効スピ間の有効相互作用の大きさが小さくなっていると考えられる。また、有効スピの同在性は維持されている一方、その大きさ自体は小さくなっている。これもスタッガード磁化の値を小さくする要因になる。

以上の研究により、有効スピの位置のパラメータ依存性と有効スピが希釈サイト近傍ではない場所に誘起する場合でも反強磁性長距離秩序が誘起することが確認された。この結果により、実験と理論の結果の一致が得られた。これらの研究結果により、スピンパイエルス物質における不純物誘起反強磁性長距離秩序の発現機構がより具体的に明らかになり、さらに、どのような物質でどこに有効スピが誘起する可能性があるかを予想しており、今後の研究に新たな広がりをもたらすものとなっている。

一方、格子の自由度をフォノンとして取り入れる研究において、フォノンの自由度をトレースアウトした有効ハミルトニアンには、多スピン交換相互作用が含まれる。本研究課題では、多スピン交換相互作用を含む量子スピン系の研究も行った。多スピン交換相互作用で表される系として代表的な物質は固体ヘリウムであり、低温における量子スピン液体の実現などに関連して興味もたれている。また、実際のヘリウム薄膜は広いパラメータ領域で実現していると

考えられ、様々なパラメータで多スピン交換模型の基底状態を調べる必要がある。本研究課題では、六体相互作用までを含む三角格子多スピン交換模型の基底状態相図を分子場近似により調べた。これまでの分子場近似による研究では、四体相互作用までの研究はされていた。しかし、これまでの研究により五体と六体相互作用も無視できないことが示唆されており、本研究では、五体と六体相互作用の効果調べた。その結果、五体・六体交換による各相の領域変化や新たな相の出現が確認された。次に、スカラーカイラリティをもつ四面体構造相における線形スピン波理論解析を実施した。平均場近似により得られる四面体構造が基底状態として安定であるパラメータ領域は、固体ヘリウムの極低温において量子スピン液体状態が実現していると考えられている領域を含んでいるが、カイラリティを持つ相は量子揺らぎに対して安定とも考えられており、四面体構造状態の量子揺らぎの効果調べたことは有意義である。本研究の結果、六体交換まで含む系でも四面体構造状態は、線形スピン波理論の範囲内で、量子揺らぎに対して安定であることが分かった。以上のように、本研究課題では、フラストレーションや様々な相互作用があるために極めて理論的解析が困難な系において研究を進めており、その結果は多スピン交換が重要な現実の物質の定量的記述を進展させるものである。

<引用文献>

- [1] C. Yasuda *et al*, Phys. Rev. B **64** (2001) 092405.
- [2] C. Yasuda *et al*, J. Phys. Soc. Jpn. **75** (2006) 124704.
- [3] J. Kikuchi *et al*, Phys. Rev. Lett. **88** (2002) 037603.
- [4] S. Akiyama and C. Yasuda, J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011) 104709.
- [5] C. Yasuda and S. Akiyama, J. Phys. Soc. Jpn. **84** (2015) 014705.
- [6] S. Todo and K. Kato, Phys. Rev. Lett. **87** (2001) 047203.

5 . 主な発表論文等

[雑誌論文](計 4 件)

- S. Taira, C. Yasuda, T. Momoi, and K. Kubo, "Spin-Wave Theory for the Scalar Chiral Phase in the Multiple-Spin Exchange Model on a Triangular Lattice", J. Phys. Soc. Jpn. **88** (2019) 014701 1-12. 査読有. DOI: 10.7566/JPSJ.88.014701
- C. Yasuda, Y. Uchihira, S. Taira, and K. Kubo, "Ground-State Phase Diagram of the Multiple-Spin Exchange Model with Up to the Six-Spin Exchange Interactions on the Triangular Lattice", J. Phys. Soc. Jpn. **87** (2018) 104704 1-12. 査読有. DOI: 10.7566/JPSJ.87.104704
- S. Miyara and C. Yasuda, "Antiferromagnetic Long-Range Order for $S = 1/2$ Two-Dimensional Site-Diluted Heisenberg Model Coupled to Lattice Degree of Freedom", J. Phys. Soc. Jpn. **87** (2018) 104702 1-8. 査読有. DOI: 10.7566/JPSJ.87.104702
- C. Yasuda and S. Miyara, "Position of Effective Spins Induced by Dilution in Two-Dimensional Spin-Peierls Systems", J. Phys. Soc. Jpn. **87** (2018) 014704 1-7. 査読有. DOI: 10.7566/JPSJ.87.014704

[学会発表](計 8 件)

- 平良翔吾、安田千寿、「六体交換まで含めた磁場中多スピン交換模型における基底状態相図」日本物理学会 2018 年秋季大会、2018 年 9 月 12 日、同志社大学(京都府・京田辺市)。
- 宮良翔太、安田千寿、「スピンパイエルス系における希釈誘起磁気モーメントの位置」日本物理学会第 73 回年次大会、2018 年 3 月 23 日、東京理科大学(千葉県・野田市)。
- 平良翔吾、安田千寿、桃井勉、「六体交換まで含めた三角格子多スピン交換模型のスピン波理論による解析」日本物理学会第 73 回年次大会、2018 年 3 月 23 日、東京理科大学(千葉県・野田市)。
- 宮良翔太、安田千寿、「格子の自由度と結合した 2 次元サイト希釈ハイゼンベルク模型における反強磁性長距離秩序の発現」日本物理学会 2017 年秋季大会、2017 年 9 月 24 日、岩手大学(岩手県・盛岡市)。
- 平良翔吾、安田千寿、桃井勉、「次々近接相互作用まで含めた多スピン交換模型における四面体構造の安定性」日本物理学会 2017 年秋季大会、2017 年 9 月 24 日、岩手大学(岩手県・盛岡市)。
- 清水元貴、安田千寿、「擬 1 次元ボンド交替系におけるネール温度」日本物理学会 2017 年秋季大会、2017 年 9 月 24 日、岩手大学(岩手県・盛岡市)。

宮良翔太、安田千寿、「格子の自由度と結合したハイゼンベルク模型におけるランダムネスの効果」日本物理学会 2016 年秋季大会、2016 年 9 月 16 日、金沢大学（石川県・金沢市）.
平良翔吾、安田千寿、「三角格子多スピン交換模型における四副格子構造のスピン波理論解析」日本物理学会 2016 年秋季大会、2016 年 9 月 16 日、金沢大学（石川県・金沢市）.

6 . 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：秋山 聡

ローマ字氏名：(AKIYAMA, Satoru)

所属研究機関名：和歌山工業高等専門学校

部局名：総合教育科

職名：教授

研究者番号（8 桁）：10256662

(2)研究協力者

研究協力者氏名：宮良 翔太

ローマ字氏名：(MIYARA, Shouta)

研究協力者氏名：平良 翔吾

ローマ字氏名：(TAIRA, Shogo)

研究協力者氏名：清水 元貴

ローマ字氏名：(SHIMIZU, Motoki)

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。