

令和元年6月10日現在

機関番号：24506

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2016～2018

課題番号：16K05419

研究課題名（和文）カゴメ格子反強磁性体のESR禁制遷移を利用したスピギャップ観測の理論的研究

研究課題名（英文）Theoretical Study to Observe the Spin Gap of the Kagome Lattice Antiferromagnet Using the Forbidden Transition of ESR

研究代表者

坂井 徹 (Sakai, Toru)

兵庫県立大学・物質理学研究科・教授

研究者番号：60235116

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,100,000円

研究成果の概要（和文）：高温超伝導の起源として注目される量子スピン液体を実現することで知られるカゴメ格子反強磁性体に対して、ギャップレスのU(1)ディラックスピン液体、及びスピギャップを持つZ2トポロジカルスピン液体と呼ばれる二つの異なる理論が提唱され、論争を呼んでいる。そこで本研究では、カゴメ格子反強磁性体のスピギャップの有無を、電子スピン共鳴（ESR）により解明するための理論を構築した。従来のESRでは、スピギャップは禁制遷移だが、カゴメ格子反強磁性体特有のジャロシンスキー・守谷相互作用のために、この遷移が可能になることを利用して、その選択則を導き、検証実験を提案した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

常温超伝導が実現すれば、大きなテクノロジーの革命につながることから、高温超伝導の開発が盛んにおこなわれている。この高温超伝導の一つのメカニズムとして、量子スピン液体が注目されている。その量子スピン液体を実現する有力候補物質として、カゴメ格子反強磁性体に取り上げられているが、この系のスピン液体の理論的描像は、まだ未解明である。本研究の成果により提案された、電子スピン共鳴を利用したスピギャップの有無を解明する検証実験が実現すれば、この系を利用した高温超伝導開発の可能性が開け、将来の常温超伝導実現につながれば、重要な技術革新をもたらすであろう。

研究成果の概要（英文）：The kagome-lattice antiferromagnet has attracted a lot of interest, because the quantum spin liquid is possibly realized in this system. Recently two different theoretical pictures were proposed for this system; One is the gapless U(1) Dirac spin liquid and the other is Z2 topological spin liquid with the spin gap. In order to determine which is correct, we considered the experimental method to observe the spin gap of the kagome-lattice antiferromagnet, using the electron spin resonance (ESR). The conventional ESR cannot detect the spin gap, because the ESR transition of the spin gap violate the spin conservation law. However, this forbidden transition is possible for the kagome-lattice antiferromagnet, because the system must have the Dzyaloshinsky-Moriya interaction. Using the numerical diagonalization of the theoretical model, we derived the selection rules of this forbidden ESR transition and proposed the experiment to determine whether the system has the spin gap or not.

研究分野：物性理論

キーワード：量子スピン系 量子スピン液体 フラストレーション カゴメ格子反強磁性体 電子スピン共鳴

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

銅酸化物高温超伝導体の発見後、その超伝導発現機構の一つとして P.W.Anderson によって提唱された、いくら温度を下げてでも秩序化しない量子スピン液体が注目されている。代表的なフラストレーション系である三角格子反強磁性体でも、120 度構造の長距離秩序が起きることが判明して以来、よりフラストレーションの強いカゴメ格子反強磁性体が有力候補となっている。中でも最も量子効果の大きい $S=1/2$ カゴメ格子反強磁性体の候補物質として、Herbertsmithite・Volborthite・Vesignieite などが合成されてからは、理論だけでなく実験研究も精力的に進められている。このカゴメ格子反強磁性体の低温での描像を記述する有力な理論として、スピン励起がギャップレスの $U(1)$ ディラック液体とスピングャップを持つ Z_2 トポロジカル液体が提唱されている。しかし、どちらが正しいかを特定するスピングャップの有無については、決定的な数値計算手法が無いことから理論的にも決着がつかないうえ、中性子散乱と NMR の結果が食い違うなど実験的にも確定していない。一方、電子スピン共鳴(ESR)では、スピンの保存則のために、励起状態間の遷移は観測できるものの、基底状態シングレットと励起トリプレットの間のスピングャップは禁制遷移なので従来は観えない。ところが、カゴメ格子反強磁性体では、格子の対称性に起因して、ジャロシンスキー・守谷相互作用による異方性があることが知られており、スピン量子数の異なる状態間の混成が起きることにより、スピングャップが ESR 直接遷移として観測されることが期待される。そこで本研究では、従来禁制遷移であるスピングャップを、ESR で観測する理論を構築し、カゴメ格子反強磁性体のスピングャップの有無に決着をつける検証実験を提案することを目標とした。

2. 研究の目的

本研究の目的は、従来はスピンの保存則のために禁制遷移と考えられている、スピングャップに相当する ESR 直接遷移が、ジャロシンスキー・守谷相互作用により観測可能となることを利用して、カゴメ格子反強磁性体におけるスピングャップの ESR 直接遷移の理論を構築し、スピングャップの有無に決着をつける検証実験を提案することである。具体的な目標は以下のとおり。

[1] ジャロシンスキー・守谷相互作用を特徴づける異方性ベクトル・外部磁場・入射マイクロ波の偏極の相対的な角度に依存した、ESR 直接遷移の選択則を明らかにする。

[2] 具体的な物質に則して、ESR 直接遷移強度の外部磁場依存性を計算して、これをもとにカゴメ格子反強磁性体の候補物質におけるスピングャップの検証実験を提案する。

本研究代表者の従来の数値的厳密対角化と有限サイズスケーリングの解析により、カゴメ格子反強磁性体はギャップレスであるという結論を出している。これを確かめるための新しい理論的手法を開発し、理論的な決着を試みることも目標の一つとである。

3. 研究の方法

(1) 電子スピン共鳴 (ESR) の選択則を導く方法

カゴメ格子反強磁性体のようなフラストレーションの強い二次元系に対する数値解析の手法としては、有限クラスターの数値的厳密対角化が最も有力な手法の一つである。この手法では、取り扱うクラスターのシステムサイズが、コンピューターのメモリーサイズによる制約から、小さい系に限られるという難点があるが、電子スピン共鳴のスペクトルを直接計算する手法としては最も優れているうえに、選択則のような定性的な議論をする場合には、ある程度小さい系でも十分であることから、この手法が最適と考える。そこで、 $S=1/2$ カゴメ格子反強磁性体の理論模型に、具体的な候補物質で想定されているジャロシンスキー・守谷相互作用の形状を取り入れ、数値対角化を実行することにより、結晶軸・外部磁場・入射波の偏極という 3 つの向きをいろいろと変えた場合の、禁制遷移にあたるスピングャップ直接遷移が観測されると仮定した選択則を導く。有限クラスターでは、必ず有限のスピングャップが存在するので、この計算は必ず実行できる。この選択則により、実際の候補物質で禁制遷移が起きる角度で実験を行い、観測されれば、ギャップあり、観測されなければ、ギャップなしという決着をつける検証実験を提案できる。

(2) 大規模数値対角化データの新しい解析法

一方で、理論的・計算科学的見地からも、カゴメ格子反強磁性体のスピングャップの有無を、より明確に確認できる新しい手法を開発し、これまでの結論を再検討する。本研究代表者は、従来のように、計算された有限クラスターのスピングャップを直接無限系に外挿する手法よりも、同じ計算結果を利用して、磁化率を求め、これを無限系に外挿する方が、より明確な結論を立証できる可能性を見出したので、この方法を実行する。

4. 研究成果

(1) ジャロシンスキー・守谷相互作用のあるカゴメ格子反強磁性体の禁制遷移の選択則 $S=1/2$ カゴメ格子反強磁性体を表すハイゼンベルグモデルに、結晶の対称性から推定される、カゴメ面に垂直な D ベクトルを持つジャロシンスキー・守谷相互作用を取り入れた理論模型に対し、有限系の数値対角化を実行し、外部磁場 H 、 D ベクトル、入射波の偏極 k

の相対角度をいろいろ変えた場合の、スピギャップ直接遷移の強度を計算した。その結果、以下のような角度に依存する選択則を得た。

i) H と D が平行な場合

外部磁場 H と k を平行とする Faraday 配位の ESR の場合にだけ有限の遷移強度が現れ、その強度は外部磁場に依存しないことがわかった。

ii) H と D が垂直な場合

外部磁場 H と k を垂直とする Voigt 配位の ESR の場合にも遷移強度が現れ、その強度は外部磁場の大きさに強く依存することがわかった。

この結果から、具体的な候補物質において、外部磁場と結晶軸を垂直にした場合と、平行にした場合に、それぞれ Faraday 配位と Voigt 配位の ESR 測定を実行すれば、スピギャップが存在する場合には、上述の選択則に従う遷移強度が現れるはずである。この測定を行い、スピギャップが観測されれば、ギャップあり、観測されなければギャップなしという決着をつける検証実験が提案できる。

(2) 新しい磁化率解析法による理論的・数値的検証

一般的な理論解析から、スピギャップが存在する場合には、絶対零度における無限系の磁化率はゼロにならなければならない。逆に言うと、この磁化率がゼロでない有限の値を持つ場合には、その系はギャップレスである。そこで、有限クラスターで計算した磁化率を無限系に外挿し、無限系の極限における磁化率を推定し、これがゼロであるか有限であるかによって、スピギャップがあるかないかを決定することを試みた。まず、デモンストラーションとして、明らかにギャップレスとして知られている $S=1/2$ 正方格子反強磁性体と、特定のボンドを強くすることによってダイマー化を起こし、明らかにギャップが開いている系に対して、この手法を適用した。つまり、有限クラスターの数値対角化により磁化率を求め、これを無限系に外挿する解析を試みたところ、予想通り、ギャップレスの場合には、無限系でも有限の値に、ギャップ系ではゼロに収束することが確かめられた。そこでこの手法を、 $S=1/2$ カゴメ格子反強磁性体に適用したところ、ほぼ明らかに、無限系の極限でも、ゼロでない有限の値に収束することが確認された。これにより、本研究代表者による、スピギャップを直接無限系に外挿した以前の研究による、ギャップレスという結論を裏付けることができた。同じ手法を $S=1/2$ 三角格子反強磁性体にも適用したところ、ギャップレスという結論を得ることができた。この系は、従来の研究によりギャップレスと信じられていることから、この手法の正当性が立証されたことになる。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 20 件)

- ① K. Okamoto, T. Tonegawa and T. Sakai, "Ground State Phase Diagram of the Bond-Alternating $S=2$ Quantum Spin Chain with the XXZ and On-Site Anisotropies -Symmetry Protected Topological Phase versus Trivial Phase-, J. Phys. Soc. Jpn. 85 (2016) 063704-1-4、査読有
<https://doi.org/10.7566/JPSJ.85.063704>
- ② K. Okamoto, T. Tonegawa and T. Sakai, Effect of monomer-monomer interactions on the phase diagrams of the $S=1/2$ distorted diamond type quantum spin chain, J. Phys.: Conf. Ser. 683 (2016) 012038-1-6、査読有
[doi:10.1088/1742-6596/683/1/012038](https://doi.org/10.1088/1742-6596/683/1/012038)
- ③ T. Tonegawa, K. Okamoto, T. Hikihara and T. Sakai, Ground-state phase diagram of an anisotropic $S=1/2$ ladder with alternating rung interactions, J. Phys.: Conf. Ser. 683 (2016) 012039-1-7、査読有
[doi:10.1088/1742-6596/683/1/012039](https://doi.org/10.1088/1742-6596/683/1/012039)
- ④ K. Ito, S. Yokoo, K. Okamoto and T. Sakai, Quantum phase transition in the twisted three-leg spin tube Polyhedron 136 (2017) 42-44、査読有
[10.1016/j.poly.2017.05.024](https://doi.org/10.1016/j.poly.2017.05.024)
- ⑤ T. Hikihara, T. Tonegawa, K. Okamoto and T. Sakai, Exact ground states of frustrated quantum spin systems consisting of spin-dimer units, J. Phys. Soc. Jpn. 86 (2017) 054709-1-8、査読有
[10.7566/JPSJ.86.054709](https://doi.org/10.7566/JPSJ.86.054709)
- ⑥ T. Tonegawa, K. Okamoto, T. Hikihara and T. Sakai, Frustrated $S=1/2$ Two-Leg Ladder with Different Leg Interactions, J. Phys.: Conf. Ser. 828 (2017) 012003-1-8、査読有
[10.1088/1742-6596/828/1/012003](https://doi.org/10.1088/1742-6596/828/1/012003)
- ⑦ H. Nakano and T. Sakai, Ferrimagnetism in the Spin-1/2 Heisenberg Antiferromagnet on a Distorted Triangular Lattice, J. Phys. Soc. Jpn. 86 (2017) 063702-1-4、査読有
[10.7566/JPSJ.86.063702](https://doi.org/10.7566/JPSJ.86.063702)

- ⑧ H. Nakano and T. Sakai, Quantum Spin Liquid in the Kagome-Lattice Antiferromagnet and Related Systems, J. Phys. : Conf. Ser. 868 (2017) 012006-1-10、査読有
10.1088/1742-6596/868/1/012006
- ⑨ A. Shimada, H. Nakano, T. Sakai and K. Yoshimura, pin-1/2 Triangular-Lattice Heisenberg Antiferromagnet $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -Type Distortion -Behavior around the Boundaries of the Intermediate Phase-, J. Phys. Soc. Jpn. 87 (2018) 034706、査読有
<https://doi.org/10.7566/JPSJ.87.034706>
- ⑩ A. Shimada, H. Nakano, T. Sakai and K. Yoshimura, The Spin-1/2 Heisenberg Antiferromagnet on a Triangular-Lattice with $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -Type Distortion -Magnetization Process and Magnetic Susceptibility-, J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy 65 (2018) 3、査読有
<https://doi.org/10.2497/jjspm.65.3>
- ⑪ T. Sakai and H. Nakano, Quantum Spin Fluid Behaviors of the Kagome- and Triangular-Lattice Antiferromagnets, J. Phys. : Conf. Ser. 969 (2018) 012127-1-6、査読有
doi :10.1088/1742-6596/969/1/012127
- ⑫ A. Shimada, T. Sakai, H. Nakano and K. Yoshimura, Spontaneous Magnetization of the Spin-1/2 Heisenberg Antiferromagnet on the Triangular Lattice with a Distortion, J. Phys. : Conf. Ser. 969 (2018) 012126-1-6、査読有
doi :10.1088/1742-6596/969/1/012126
- ⑬ T. Sakai and H. Nakano, gapless Spin Excitations in the $S=1/2$ Kagome- and Triangular-Lattice Heisenberg Antiferromagnets, Physica B 536 (2018) 85-88、査読有
<https://doi.org/10.1016/j.physb.2017.08.058>
- ⑭ H. Nakano and T. Sakai, Numerical Diagonalization Study of Magnetization Process of Frustrated Spin-1/2 Heisenberg Antiferromagnets in Two Dimensions -Triangular- and Kagome-Lattice Antiferromagnets-, J. Phys. Soc. Jpn. 87 (2018) 063706-1-5、査読有
10.7566/JPSJ.87.063706
- ⑮ H. Nakano and T. Sakai, Precise Estimation of the $S=2$ Haldane Gap by Numerical Diagonalization, J. Phys. Soc. Jpn. 87 (2018) 105002-1-2、査読有
<https://doi.org/10.7566/JPSJ.87.105002>
- ⑯ T. Tonegawa, T. Hikihara, K. Okamoto, S. C. Furuya and T. Sakai, Ground-State Phase Diagram of an Anisotropic $S=1/2$ Ladder with Different Interactions, J. Phys. Soc. Jpn. 87 (2018) 104002-1-11、査読有
10.7566/JPSJ.87.104002
- ⑰ H. Nakano and T. Sakai, Third Boundary of the Shastry-Sutherland Model by Numerical Diagonalization, J. Phys. Soc. Jpn. 87 (2018), 123702-1-5、査読有
<https://doi.org/10.7566/JPSJ.87.123702>
- ⑱ T. Sakai and H. Nakano, Ground state with nonzero spontaneous magnetization of the two-dimensional spin-1/2 Heisenberg antiferromagnet with frustration, AIP ADVANCES 8 (2018) 101408-1-5、査読有
<https://doi.org/10.1063/1.5042780>
- ⑲ Y. Hasegawa, H. Nakano and T. Sakai, Metamagnetic jump in the spin-1/2 antiferromagnetic Heisenberg model on the square kagome lattice, Phys. Rev. B 98 (2018) 014404-1-9、査読有
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.98.014404>
- ⑳ M. Fujiwara, N. Shima, K. Makoshi and T. Sakai, Analysis of Rashba Effect on Au(111) Model Surface, J. Phys. Soc. Jpn. 88 (2019), 034604-1-5、査読有
<https://doi.org/10.7566/JPSJ.88.034604>

[学会発表] (計 10 件)

- ① T. Sakai、(招待講演) Spin Nanotubes, Energy, Material, Nanotechnology Meeting (Melbourne)、2016
- ② T. Sakai、(招待講演) Quantum Spin Fluid Behaviors of the Kagome- and Triangular-Lattice Antiferromagnets、International Conference on Low-Temperature Physics (LT28) (Sweden), 2017
- ③ T. Sakai and H. Nakano, Gapless Spin Excitations in the Kagome- and Triangular-Lattice Antiferromagnets, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES2017) (Prague), 2017
- ④ T. Sakai, Spin-Nematic and Spin-Liquid Phases in Low-Dimensional Antiferromagnets, International Workshop on Multipole Physics and Related Phenomena (Hachimantai,

- Iwate) , 2017
- ⑤ T. Sakai, Gapless Quantum Spin Liquid of Kagome-Lattice Antiferromagnet, Junjiro Kanamori Memorial International Symposium -New Horizon of Magnetism- (Tokyo), 2017
 - ⑥ T. Sakai and H. Nakano, Quantum Spin Liquid of the Kagome- and Triangular-Lattice Antiferromagnets and Related Materials, YIPQS Long-Term and Nishinomiya-Yukawa Memorial Workshop Novel Quantum States in Condensed Matter(Kyoto), 2017
 - ⑦ T. Sakai and H. Nakano, Gapless Quantum Spin Liquid of the Kagome-Lattice Antiferromagnet, American Physical Society March Meeting (Los Angels), 2018
 - ⑧ A. Shimada, H. Nakano, T. Sakai and K. Yoshimura, The Numerical Study of Quantum Phase Transitions of the Heisenberg Antiferromagnet on a Frustrated Two Dimensional Lattice, International Conference on Magnetism (ICM2018)(San Francisco), 2018
 - ⑨ T. Sakai and H. Nakano, Exotic Quantum Spin Liquid of Kagome Lattice Antiferromagnet, International Conference on Coordination Chemistry (ICCC2018) (Sendai), 2018
 - ⑩ T. Sakai and H. Nakano, Magnetization Process of the Triangular- and Kagome-Lattice Antiferromagnets, American Physical Society March Meeting (Boston), 2019

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年：
国内外の別：

○取得状況 (計 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年：
国内外の別：

[その他]

ホームページ等

URL: <http://cmt.spring8.or.jp/index.shtml>

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：中野博生

ローマ字氏名：Hiroki Nakano

所属研究機関名：兵庫県立大学

部局名：物質理学研究科

職名：助教

研究者番号 (8 桁)：00343418

研究分担者氏名：利根川孝

ローマ字氏名：Takashi Tonegawa

所属研究機関名：神戸大学

部局名：理学部

職名：名誉教授

研究者番号（8桁）：80028167

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：

ローマ字氏名：

※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。