

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 11 日現在

機関番号：12401

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2009～2013

課題番号：21540379

研究課題名(和文)量子スピン液体から生まれる新奇な磁気秩序の理論的研究

研究課題名(英文)Theoretical studies of the novel magnetic orders emergent from quantum spin liquids

研究代表者

飛田 和男 (HIDA, Kazuo)

埼玉大学・理工学研究科・教授

研究者番号：20133704

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円、(間接経費) 840,000円

研究成果の概要(和文)：低次元磁性体においては、スピンの大きさやスピン間相互作用の空間変化、フラストレーション、ランダムネス、量子効果などが競合することによって、種々のトポロジカルに異なる量子スピン液体相、そこから生まれる新規な秩序を伴う相、さらにその間の量子相転移が実現する。これらを、数値対角化、密度行列繰り込み群、モンテカルロ法などの数値的手法と厳密解、低エネルギー有効理論、修正スピン波近似等の解析的手法を駆使して明らかにした。

研究成果の概要(英文)：In the low dimensional magnets, various topologically different quantum spin fluid phases, novel types of ordered phases emergent from them, and the quantum phase transitions between these phases are induced by the interplay of frustration, randomness, quantum effects, and spatial variation of the spin magnitudes and interactions. We have clarified their nature using the computational methods such as numerical exact diagonalization, density matrix renormalization group, and Monte Carlo method in addition to the analytical methods such as exact solution, low energy effective theory, and modified spin wave method.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学、数理物理・物性基礎

キーワード：量子スピン系 量子スピン液体 トポロジカル相 ダイヤモンド鎖 スピン梯子・チューブ フラストレーション フェリ磁性 スピングラス

1. 研究開始当初の背景

低次元量子磁性体の基底状態において、強い量子揺らぎのために実現する量子スピン液体状態は、酸化物高温超伝導の機構との関連から広く注目を浴び、本研究代表者を始め世界中の研究者によって最近十数年間に活発に研究されてきた。その結果、これらの状態は単なる没個性の非磁性状態ではなく、量子的な揺らぎとして多様な構造を包含していることが明らかになった。このことを反映して、これらの量子スピン液体状態は様々な摂動のもとで多様な磁気秩序を生み出す。具体的には、これまでもよく知られたランダムネスや磁場によって誘起される反強磁性秩序状態に加え、本研究代表者によって提唱された、フラストレーションや異方性の空間変化によって誘起される長周期秩序状態やフェリ磁性状態などが知られるようになってきた。

さらに、現代の新物質創製技術、微細加工技術により、種々の新奇な物質を現実により出すことができるようになり、低温、強磁場、高圧等の極限環境での実験技術の進歩ともあいまって多様な量子現象が観測できるようになった。また、光学格子中にトラップされた原子系のように、これまでの「物質」の概念を越えた系においては、これまでになく自由にコントロールされた条件下で新規な多体量子現象を観測することが可能になっている。これに伴い、理論的にもこれまでになく幅広い視野を持って多彩な現象を研究の対象とすることができるようになってきた。

2. 研究の目的

このような系の理論的研究を様々な数値的・解析的手法を組み合わせる事が本研究の中心的課題である。数値的方法に関しては、近年のコンピューターハードウェア、コンパイラおよび計算アルゴリズムのめざましい進歩により、飛躍的に高度な計算が可能となってきている。また、解析的手法に関しては、現代的な場の理論の応用の恰好の舞台でもある。また、厳密解の得られるモデルは、種々の近似法の出発点になりまたその試金石ともなる。本研究計画はこれらの手法を駆使し、量子スピン液体状態からどのような秩序状態が生み出されるかを理論的に解明するとともに、それらを実験室で実現した物質の解析に応用し、さらに興味深い現象を探る指針を与えることを目的とする。

3. 研究の方法

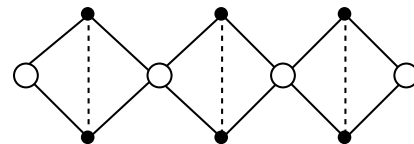
- (1) 解析的なアプローチが不可能なモデルについて、大規模数値計算として、Lanczos法による数値対角化、密度行列繰り込み群を用いた。
- (2) 厳密解が存在するモデルについて、解析的に正確な知見を得た。また、種々の物理量について、厳密解を用いた数値的評価を行った。

- (3) 厳密解を持つモデルを出発点にして、その近傍の厳密解のない領域で適用可能な低エネルギー有効理論を構成し、これを用いた解析を行った。
- (4) フラストレーションの弱い系では、フラストレーションのない系で有効性が確認されている近似法の適用を試み、その適用限界を考察した。
- (5) 関連した古典系においては近年改良された古典モンテカルロ法のアルゴリズムやランダム系に拡張された転送行列法を用いて解析を進めた。
- (6) これらのすべての数値計算において、東京大学物性研究所・京都大学基礎物理学研究所のスーパーコンピュータに加え、本研究計画で研究室に導入した計算サーバ群を活用した。

4. 研究成果

本研究計画は、最終年度前年度の申請が認められ、平成25年度から新たに5年間の研究が始まった。ここには、その平成25年度の成果を含め記述する。

- (1) スピン1と1/2の混合スピンドイヤモンド鎖



混合スピンドイヤモンド鎖とは図に示すように、1つの単位胞の中に1つのスピン1の磁性イオン（白丸）と2つのスピン1/2の磁性イオン（黒丸）が存在する1次元ハイゼンベルグモデルを指す。このモデルについて以下の結果を得た。

- ① このモデルは強いフラストレーションを持つが、そのおかげでかえって厳密に固有状態をすべて種々の長さのクラスタの固有状態の直積として構成することができ、点線と実線で表されている2種の相互作用の比 $\lambda$ によって、Haldane相、常磁性相以外に並進対称性が自発的に破れた3種類の相が基底状態として現れることが分かった。(論文⑩)
- ② これらの固有状態を元に、有限温度の統計力学を定式化し、比熱や帯磁率の振る舞いを明らかにした。また、それらの物理的描像を示した。(論文⑩)
- ③ ボンド交替がある場合も、すべての固有状態を種々の長さのクラスタの固有状態の直積として構成することができることを示した。特に、臨界的なボンド交替の強さの場合に、基底状態で $\lambda$ の変化に伴い無限回の量子相転移が起きることを示した。また、この場合のキュリー定数や残留エントロピーの特異な振る舞いを明らかにした。(論文⑨)
- ④ スピン1サイトに1イオン異方性がある場合も、すべての固有状態を種々の長さ

のクラスタの固有状態の直積として構成することができることを示した。また、有限温度の統計力学を定式化し、比熱や帯磁率の振る舞いを明らかにし、それらの物理的描像を示した。さらに、スピン 1/2 間のボンドにも異方性がある場合について、基底状態の相図を調べた。(論文⑤、学会発表①、⑨)

- ⑤ 上記の厳密に解ける場合を出発点に、格子構造の歪みがある場合を取り扱った。この場合は厳密には解は求められないが、数値計算と低エネルギー有効理論により、自発的並進対称性の破れを伴う Haldane 状態、量子化フェリ磁性状態、部分フェリ磁性状態など多様な基底状態が実現することを示した。(論文⑧、学会発表⑩、⑪)

現時点では実験物質としてこのモデルに対応する物は見つかっていないが、スピン 1/2 の歪んだダイヤモンド鎖は実現しているので、今後、物質開発が期待される。

- (2) 2次元高スピン反強磁性体における異方性の空間変化の効果

この問題を量子力学的に取り扱う前段階として、1 イオン異方性が交替するスピン 1 の 2次元 Blume-Capel モデルを考え、有効的に量子効果を表す次近接相互作用の効果も取り入れて、数値シミュレーションによる研究を行った。シミュレーションの手法としては非平衡緩和法や Wang-Landau 法による古典モンテカルロ法を用いた。

調べたパラメータ領域では、このモデルは 2段階のイジング相転移を示すことがわかった。また、異方性の強い領域では通常の Blume-Capel モデルと同様、低温側の転移が 1次転移になることも分かった。(論文⑦)

- (3) フラストレーションのある強磁性梯子ハイゼンベルグモデル

① このモデルで表される物質  $\{Cu^+Cl(O-mi)\}_2(\mu-Cl)_2[m_i=2\text{-methylisothiazol-3}(2H)\text{-one}]$  が本学基礎化学科において合成された。これに伴い、この物質の帯磁率の温度依存性を数値対角化により解析し、相互作用パラメータを推定した。(論文⑥)

② 相互作用パラメータをより広い範囲で変化させ、修正スピン波近似により、帯磁率や磁気構造因子を調べた。この結果、修正スピン波近似の結果は有限系の数値対角化から得られる結果と相補的な温度領域で信頼できる結果を与える事が分かった。さらに、強磁性基底状態の安定性が失われる境界に近づいても、修正スピン波近似が低温極限の定性的な振る舞いに関しては信頼できる結果を与える事が分かった。(論文④、学会発表⑦)

③ 桁相互作用が強磁性・反強磁性に交替する場合についても基底状態相図を求めた。強磁性相・非磁性相以外に量子化フェリ磁性相、部分フェリ磁性相が現れることが分かった。さらに、非磁性相の中には少なくとも rung dimer 相と columnar dimer 相が現

れることが分かった。(学会発表②、⑧)

- (4) 1次元ランダム磁性体

このテーマについても、量子系を取り扱う前に、1次元梯子±J イジングスピングラスについて研究を行った。このモデルについては、Mattis-Paul によって転送行列法を使って有限温度の厳密解が得られることが知られている。しかし、この厳密解について再検討したところ、基底状態の評価に誤りがあることが分かった。そこで、この系について研究を進め以下の結果を得た。(論文③)

① 正しい基底状態を求める方法を提案し正確な基底エネルギーを得た。

② 有限温度の数値計算法を正確なものに、修正し、正確な自由エネルギーを得た。

③ より幅の広い梯子やチューブ状の場合についてこの方法を拡張し、偶数脚チューブと奇数脚チューブおよび梯子で、低温での比熱やエントロピーの振る舞いが本質的に異なることを数値的に示した。

④ 系のトポロジーの考察から、偶数脚チューブの場合のみ励起エネルギーが 2倍になることを示し、この現象の原因を解明した。

- (5) スピン 1/2 の強磁性次近接相互作用のある強磁性・反強磁性交替鎖におけるフラストレーション誘起トポロジカル相

このモデルは(3)のモデルの一種ともみなせる。この系について、非磁性領域での基底状態相図を密度行列繰り込み群や厳密解により調べ、以下の結果を得た。

① 密度行列繰り込み群により、開放端境界条件での端スピンを消すために付け加えなくてはならない追加スピンの数を調べた。これにより、強磁性相に隣接する領域で、トポロジカルに異なる 2種の非磁性相が交互に現れることが分かった。

② Dmitriev ら (Phys. Rev. B56 (1997) 5985, Eur. Phys. J. B14 (2000) 91.) によって強磁性・非磁性相境界上で得られた厳密解のスピン分布を数値的に評価した。この結果、①で得られた一連の相は、special point と呼ばれる点における解に対応することが分かり、解析的にも一連のトポロジカル相が存在することが明確になった。

これらの結果は、フラストレーションによって引き起こされたトポロジカル相の間の相転移として、他の系には見られない非自明な結果である。(論文②、学会発表③、⑤、⑥)

(6) 異方性の交替するスピン 2 のハイゼンベルグ鎖 (論文①、学会発表④)

① Haldane 相、Large-D 相、倍周期ネール相、量子化フェリ磁性相、部分フェリ磁性相、ギャップレススピン液体相の多くの相を含む基底状態相図が実現することを明らかにした。

② スピン 1 の場合と異なり、広い領域でフェリ磁性相やギャップレススピン液

体相が実現するが、これは、系がより古典領域に近づいていることを反映している。

- ③ 数値的には確認することができなかったが、低エネルギー有効理論から、ギャップレススピン液体相と倍周期ネール相の間には、スピンギャップ相の存在が予測される。

#### 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 11 件)

- ① K. Hida: Ground-State Phase Diagram of  $S=2$  Heisenberg Chains with Alternating Single-Site Anisotropy : J. Phys. Soc. Jpn. 83, 034707 (2014). 査読有  
DOI: 10.7566/JPSJ.83.034707
- ② K. Hida, K. Takano and H. Suzuki : Topological Phases of the Spin-1/2 Ferromagnetic-Antiferromagnetic Alternating Heisenberg Chain with Frustrated Next-Nearest-Neighbour Interaction : J. Phys. Soc. Jpn. 82, 064703 (2013). 査読有  
DOI: 10.7566/JPSJ.82.064703
- ③ K. Hida : Statistical Transfer Matrix Study of the  $\pm J$  Multileg Ising Ladders and Tubes: J. Phys. Soc. Jpn. 81, 074701 (2012). 査読有  
DOI: 10.1143/JPSJ.81.074701
- ④ K. Hida and T. Iino : Modified Spin Wave Analysis of Low Temperature Properties of the Spin-1/2 Frustrated Ferromagnetic Ladder: J. Phys. Soc. Jpn. 81, 034708 (2012). 査読有  
DOI: 10.1143/JPSJ.81.034708
- ⑤ K. Hida and K. Takano : Effects of Single-site Anisotropy on Mixed Diamond Chains with Spins 1 and 1/2: J. Phys. Soc. Jpn. 80, 104710 (2011). 査読有  
DOI: 10.1143/JPSJ.80.104710
- ⑥ M. Kato, K. Hida, T. Fujihara, and A. Nagasawa: Ferromagnetic Spin Ladder System: Stack of Chlorido-Bridged Dinuclear Copper(II) Complexes with 2-Methylisothiazol-3(2H)-one: Eur. J. Inorg. Chem. 2011, 495-502 (2011). 査読有  
DOI: 10.1002/ejic.201000096
- ⑦ S. Matsumoto, N. Ito and K. Hida: Critical Behavior of the Square Lattice Blume-Capel model with an Alternating Anisotropy and Next Nearest Neighbour Interaction : Physics Procedia 3, 1453 (2010). 査読有  
DOI: 10.1016/j.phpro.2010.01.206
- ⑧ K. Hida, K. Takano and H. Suzuki : Haldane Phases and Ferrimagnetic Phases with Spontaneous Translational Symmetry

Breakdown in Distorted Mixed Diamond Chains with Spins 1 and 1/2: J. Phys. Soc. Jpn. 79, 114703 (2010). 査読有  
DOI: 10.1143/JPSJ.79.114703

⑨ K. Hida, K. Takano and H. Suzuki : Quantum Phase Transitions in Alternating-Bond Mixed Diamond Chains with Spins 1 and 1/2 : J. Phys. Soc. Jpn. 79, 044702 (2010). 査読有  
DOI: 10.1143/JPSJ.79.044702

⑩ K. Hida, K. Takano and H. Suzuki: Finite Temperature Properties of the Mixed Diamond Chain with Spins 1 and 1/2, J. Phys. Soc. Jpn. 78, 084716 (2009). 査読有 DOI: 10.1143/JPSJ.78.084716

⑪ K. Takano, H. Suzuki and K. Hida: Exact spin-cluster ground states in a mixed diamond chain: Phys. Rev. B80, 104410 (2009). 査読有  
DOI: 10.1103/PhysRevB.80.104410

[学会発表] (計 11 件)

① 飛田和男, 高野健一: 異方性のある混合スピンドイヤモンド鎖の基底状態, 日本物理学会 第 69 回年次大会(2014 年 3 月 28 日、東海大学湘南キャンパス)

② 飛田和男: 桁交替強磁性梯子ハイゼンベルグモデルの基底状態相転移 II, 日本物理学会 2013 年秋季大会(2013 年 9 月 25 日、徳島大学)

③ K. Hida, K. Takano, and H. Suzuki : Topological Phases of the Spin-1/2 Ferromagnetic-Antiferromagnetic Alternating Heisenberg Chain with Frustrated Next-Nearest-Neighbour Interaction, EQPCM 2013 Symposium (June 14, 2013, ISSP, Kashiwa)

④ 飛田和男: 異方性が交替する高スピン 1 次元ハイゼンベルグモデルの基底状態, 日本物理学会第 68 回年次大会, 2013 年 3 月 28 日, 広島大学

⑤ 飛田和男: フラストレートしたスピン 1/2 強磁性・反強磁性交替鎖の基底状態, 基研研究会「量子スピン系の物理」2012 年 11 月 12 日, 京都大学基礎物理学研究所

⑥ 飛田和男: フラストレートしたスピン 1/2 強磁性・反強磁性交替鎖の基底状態, 日本物理学会 2012 年秋季大会 2012 年 9 月 18 日, 横浜国立大学

⑦ 飛田和男, 飯野貴士: 非対称フラストレート強磁性梯子ハイゼンベルグモデルの基底状態と低温磁性, 日本物理学会 2011 年秋季大会, 2011 年 9 月 21 日 富山大学

⑧ 飛田和男: 桁交替強磁性梯子ハイゼンベルグモデルの基底状態相転移, 日本物理学会 第 66 回年次大会, 2011 年 3 月 26 日新潟大学(震災により中止のため、学会 WEB 上で資料公開)

⑨ 飛田和男, 高野健一: 異方的混合スピンドイヤモンド鎖の基底状態, 日本物理学会 2010 年秋季大会, 平成 22 年 9 月 25 日, 大阪

府立大学

⑩ 飛田和男、高野健一、鈴木秀則：歪んだ混合スピンドイヤモンド鎖における基底状態相転移 II, 日本物理学会第 65 回年次大会, 平成 22 年 3 月 22 日, 岡山大学

⑪ 飛田和男、高野健一、鈴木秀則：歪んだ混合スピンドイヤモンド鎖の基底状態, 特定領域「フラストレーションが創る新しい物性」平成 21 年度領域成果報告会, 平成 22 年 1 月 7 日, 京都大学基礎物理学研究所

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

飛田和男 (HIDA, Kazuo)

埼玉大学・大学院理工学研究科・教授

研究者番号：20133704