

## 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：13801

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23540390

研究課題名(和文)複合スピン系における新しい量子相転移 - 多極子の視点から -

研究課題名(英文) Nobel quantum phase transition in multispin systems - from multipole view point of view -

研究代表者

松本 正茂 (Matsumoto, Masashige)

静岡大学・理学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：20281058

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,500,000円、(間接経費) 750,000円

研究成果の概要(和文)：複数のスピンの基本単位となる複雑な磁性体(複合スピン系)では、これまでと異なった理論が必要である。そこで、そのような部分を基本単位として捉え、複雑なスピン構造を形状因子に反映させることで、それをあたかも一つの原子のように取り扱える方法を考案した。この形状因子は複合スピンがもつ多極子の性質を反映しており、この理論を具体的な磁性体に適用して中性子散乱を定量的に解析できる理論を提出した。また、磁性イオンが置かれている環境によって、スピンに依存する電気分極が発生する場合がある。この点についても考察し、具体的な磁性体において、スピンによる四極子が存在し、その間に相互作用が働いていることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)： We proposed a theory for complicated quantum spin systems in which plural spins interact with each other strongly. The strongly interacting part can be regarded as a multispin unit and we introduced a form factor that depends on magnetic structure of the multispin unit. We applied the theory to a particular materials and investigated intensity of inelastic neutron scattering. When the magnetic ion is located at a site without inversion symmetry, quadrupole operator becomes equivalent to the electric polarization. This results in multiferroic properties. In a particular material, there are intersite quadrupole interactions. We reported that they can determine the easy axis.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物性II

キーワード：磁性 量子スピン系 多極子 マルチフェロイクス

## 1. 研究開始当初の背景

(1) 物質が示す磁性は、磁気モーメントの間に働く交換相互作用が主な原因である。この場合、磁性体が磁気モーメント(双極子モーメント)を持っていることが重要となる。しかし、量子スピン系に強いフラストレーションがあると磁気秩序は強く抑えられ、双極子ではなく四極子のような多極子秩序の出現が示唆されている。この場合、1つの原子が局所的に多極子の自由度を持つのではなく、隣接する原子とのスピンの間で形成される多極子について研究が進んでいる。

(2) 一方、Ce や Pr といった希土類に代表される f 電子系は原子内の電子構造が複雑で、原子が局所的に多極子の自由度を持ち、これが原因となって多極子秩序が実現されている。これと同様に、複数のスピンの相互作用して基本単位となっている複合スピン系では、複数のスピンの絡んだ基本単位による複雑なスピン多重構造が存在し、多極子の自由度が存在してもおかしくないと考えられる。

(3) 新しい起源による磁性を探る研究は、磁性の新たな可能性を探るうえで必要である。本研究では、この点について、複合スピン系の量子相転移について、多極子の視点から研究を行う。

## 2. 研究の目的

複合スピン系の研究は、2つのスピンの強く結合した2量体系(ダイマー系)を中心として研究が進められているが、三量体や四量体の研究は進んでいない。本研究では、一般的な複合スピン系の磁気励起について、多極子の視点から研究を行う。それによって、中性子散乱の実験結果を定量的に解析できる理論を構築することができ、理論だけに留まらず、今後の実験においても有用となる。また、光散乱や光吸収についても考察し、スピンの持つ多極子による影響をについて調べ、量子スピン系に潜む多極子自由度による新たな物理現象を開拓することを目的とする。

## 3. 研究の方法

(1) 複合スピン系では、複雑なスピン多重項構造が局所的に形成される。低エネルギー励起だけを議論する場合、通常のスピン波理論を適用することも可能であるが、多極子の自由度が基底状態と励起状態の間をつなぐ場合が考えられるため、本研究では高エネルギーの励起状態についても考慮する。このような高エネルギーを含む複数の励起レベルが存在する場合に、スピン波励起を精度よく記述する方法として、ボンド演算子の方法を一般的な場合に拡張した、拡張スピン波の方法がある。

(2) 本研究ではこの方法を用いる。拡張スピン波理論では、まず古典解を平均場によって求める。次に、得られた古典解を基に、局

所的なエネルギーレベルに対してボソンを導入し、サイト間相互作用による量子効果を取り込んで磁気励起の分散関係を求める。この方法では演算子をユニタリー変換せず、平均場解による波動関数を基にして、サイト間相互作用の行列要素を数値的に計算する。そして、ボソンに対するボゴリューボフ変換を通じてハミルトニアンを対角化し、スピン波励起の分散関係を求める。この理論を適用することで、複雑な複合スピンについても、同じ理論で系統的に調べることが可能となる。

(3) さらに、非弾性中性子散乱の散乱強度を計算するため、複合スピンに対する形状因子を導入する。これによって、複合スピンをあたかも1つの原子のように取り扱うことができ、動的スピン相関関数を見通し良く計算することが可能となる。

(4) また、スピン系がもつ多極子の自由度については、群論的考察により多極子を分類し、具体的な物質について、活性となる多極子について議論する。

## 4. 研究成果

(1)  $\text{Cu}_3\text{Mo}_2\text{O}_9$  の磁気励起とマルチフェロイクス性(論文)

$\text{Cu}_3\text{Mo}_2\text{O}_9$  は、結晶構造から1次元性が強いことが知られており、 $S=1/2$  による1次元鎖が基本構造を形成している。この1次元鎖に加えて、2つのスピンの強く結合したダイマーも存在し、1次元鎖と相互作用していると考えられている。この点は、非弾性中性子散乱の実験結果からも示唆されている。一方、低温で磁気秩序を示すため、3次元的な相互作用も存在することがわかる。我々はこの物質について、ダイマーとモノマーが結合したモデルで理論的な解析をおこない、非弾性中性子散乱の実験結果を定量的に再現することに成功した。また、この物質では、磁気転移にともなって電気分極が生じることが知られている。この点については、三角形の構造を有するスピン系において、ブラエフスキーらによるマルチフェロイクスの理論があり、このモデルに基づいて $\text{Cu}_3\text{Mo}_2\text{O}_9$  のマルチフェロイクス性を解析した。その結果、強磁場を加えた場合、ダイマーのシングレット-トリプレットの入れ替わりに対応した磁気転移が起こり、それによって電気分極も大きく変化することを理論的に指摘した。今後の実験との比較検討により、 $\text{Cu}_3\text{Mo}_2\text{O}_9$  のマルチフェロイクス性の起源を議論することが可能である。

(2) 3重量子ドットによるスピン電荷制御(論文)

上記のブラエフスキーらによるマルチフェロイクス性の起源の新しいモデルを応用し、ナノ・メゾ系におけるスピン電荷制御の新たな理論モデルを提出した。具体的には、3個の量子ドットが正三角形の構造を形成し(3重量子ドット)、その内の1つのドットが電気伝導性のあるリード線と結合したモデルである。3重量子ドットの部分は強いクーロ

ン相互作用のため絶縁体に転移しており、スピンの自由度だけが残っている。一方、リード線と結合したドットにより近藤効果が起きる。このため、スピンの自由度がもつ正三角形の対称性が破壊され、それに伴って電気分極が発生する。これは、電気分極とスピンの自由度が結合していることが原因である。上記の(1)の研究の発展・応用により、このようなスピン電荷制御の新しい機構を提案した。

(3) スピン3量体系の磁気励起(論文) 複合スピン系の典型例として、スピン3量体の磁気励起の理論を提出した。具体的な3量体物質を取り上げ、拡張スピン波理論を適用した。その際、結晶構造に基づいて3量体の形状因子を導入し、非弾性中性子散乱を定量的に解析できる理論を構築した。この形状因子の中には、単純な双極子モーメントでは説明できない多極子的な成分も含まれている。今後の3量体系の実験結果との比較検討が期待される。

(4)  $\text{KCuCl}_3$ の圧力誘起磁気秩序相における振幅モードとラマン散乱(論文) スピンドイマー系の典型物質である  $\text{KCuCl}_3$  について、圧力下におけるラマン散乱実験で、振幅モード(縦モード)スピン波が観測されていることを実験グループと共同で解明した。

(5)  $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$  のマルチフェロイクスと多極子(論文)  $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$  は2次元的に相互作用している  $S=3/2$  の系で、磁気秩序に伴って電気分極が出現するマルチフェロイクス物質である。この物質の大きな特徴は、容易面型の強いシングルイオン異方性があることである。このため、秩序化した磁気モーメントの大きさは通常の場合よりも大きく縮んでいる。このような状況では、磁気励起の中に磁気モーメントの伸び縮みに対応した振幅モード(縦モード)スピン波が存在する。この物質についても拡張スピン波の方法を適用することで、振幅モードも含んだ磁気励起全体を記述することが可能となる。実験グループと協力して、非弾性中性子散乱の実験結果を定量的に説明することに成功した。一方、この物性では、容易面の中に弱い磁気異方性が存在することが知られている。結晶が正方晶であるため、通常の磁気的な相互作用からこの異方性を説明することはできない。そこで、この弱い異方性の起源として、 $S=3/2$  の系に存在する四極子の自由度に着目した。四極子間相互作用を仮定すると、実験で観測された弱い異方性を定性的に説明することができた。この結果により、量子スピン系であっても四極子間相互作用が存在し、それによって磁気異方性がもたらされて容易軸が決まることを明らかにした。また、この四極子は電気分極と同じ対称性に分類されるため、四極子を通じてスピンと電場が結合する。その結果、光の電場成分によるエレクトロマグノン励起が可能となる。

(6) 容易面型の強い異方性のある  $S=1$  の系と Higgs モード(論文)

$\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$  における研究を進展させ、 $S=1$  の場合について理論的に研究した。 $S=3/2$  の場合と異なり、 $S=1$  の系に強い容易面型の異方性があると、低温まで磁気秩序を示さない。一方、圧力でスピン間相互作用を増強させると、圧力誘起の磁気秩序が起こる。その場合、秩序状態では磁気モーメントの方向が揺らぐ通常のスピン波モード(横モード)と、モーメントの伸び縮みに対応した振幅モード(縦モード)のスピン波が存在する。この圧力誘起量子相転移は、ソフト化したマグノンのポーズ・アインシュタイン凝縮として理解でき、モーメントの方向の揺らぎによる励起はボソンの位相の揺らぎで記述され、Nambu-Goldstone モードとして理解される。一方、振幅モードはヒッグスポテンシャルを駆け上がる励起として理解され、Higgs モードと呼ばれる。圧力誘起の量子相転移に伴って Higgs モードが形成されると、Higgs モードは四極子を通じて光の電場成分と結合できる。その結果、エレクトロマグノン励起として、Higgs モードが観測されることを理論的に明らかにした。 $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$  の類似物質として  $S=1$  の物質も報告されているため、今後の実験の進展が期待される。また、この研究をさらに発展させ、対称的なスピン積が起源となる電気分極によって励起されるエレクトロマグノンの場合、Higgs モードが選択的に励起されることを明らかにした。

## 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 9 件)(全て査読有り)

M. Matsumoto, “Electromagnon as a Probe of Higgs (Longitudinal) Mode in Collinear and Noncollinear Magnetically Ordered States”, accepted to J. Phys. Soc. Jpn. Vol. 83 (2014) (11 pages)

M. Matsumoto, M. Soda, and T. Masuda, “Theoretical Study on Multiferroic Properties in Integer Spin Systems with Large Single-Ion Anisotropy”, accepted to JPS Conf. Proc. (2014) (6 pages)

M. Soda, M. Matsumoto, M. Mansson, S. Ohira-Kawamura, K. Nakajima, R. Shiina, and T. Masuda, “Spin-Nematic Interaction in the Multiferroic Compound  $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ ”, Phys. Rev. Lett. Vol. 112 127205 (2014) (5 pages)

DOI:<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.112.127205>

M. Koga, M. Matsumoto, and H. Kusunose, “Field-Controlled Spin and Charge Distributions in Kondo System with a Triangular Triple Quantum Dot”, J. Phys.

Soc. Jpn. Vol. 82 (2013) 093706 (4 pages)  
DOI:http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.82.093706

M. Matsumoto, M. Soda, and T. Masuda, "Quantum-Phase-Transition-Induced Multiferroics and Higgs Mode in Integer Spin Systems in Noncentrosymmetric Lattice with Strong Single-Ion Anisotropy", J. Phys. Soc. Jpn. Vol. 82 (2013) 093703 (5 pages)

DOI:http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.82.093703

M. Koga, M. Matsumoto, and H. Kusunose, "Emergent Electric Polarization by Kondo Effect in a Triangular Triple Quantum Dot", J. Phys. Soc. Jpn. Vol. 81 (2012) 123703 (4 pages)

DOI:http://dx.doi.org/10.1143/JPSJ.81.123703

H. Kuroe, N. Takami, N. Niwa, T. Sekine, M. Matsumoto, F. Yamada, H. Tanaka, and K. Takemura, "Longitudinal magnetic excitation in  $\text{KCuCl}_3$  studied by Raman scattering under hydrostatic pressures", J. Phys. Conf. Ser. Vol. 400 (2012) 032042 (4 pages)

DOI:10.1088/1742-6596/400/3/032042

Y. Hasegawa and M. Matsumoto, "Magnetic Excitation in Interacting Spin Trimer Systems Investigated by Extended Spin-Wave Theory", J. Phys. Soc. Jpn. Vol. 81 (2012) 094712 (23 pages)

DOI:http://dx.doi.org/10.1143/JPSJ.81.094712

M. Matsumoto, H. Kuroe, T. Sekine, and M. Hase, "Magnetic Excitation and Electric Polarization in Strongly Coupled Spin Monomer and Dimer System  $\text{Cu}_3\text{Mo}_2\text{O}_9$ ", J. Phys. Soc. Jpn. Vol. 81 (2012) 024711 (14 pages)

DOI:http://dx.doi.org/10.1143/JPSJ.81.024711

[学会発表](計 14 件)

松本正茂「スピン系の量子相転移と Higgs モード」日本物理学会(東海大学, 2014年3月)

左右田稔, 林田翔平, Bertrand Roessli, Martin Mansson, Jonathan White, 松本正茂, 椎名亮輔, 益田隆嗣「マルチフェロイック物質  $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$  における磁気モーメントの電場制御」日本物理学会(東海大学, 2014年3月)

松本正茂「エレクトロマグノン励起として現れる振幅モードの理論的研究」(チュートリアル講演)日本物理学会(東海大学, 2014年3月)

左右田稔, 松本正茂, 河村聖子, 中島健次, 益田隆嗣「マルチフェロイック物質  $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$  における特異な磁気異方性ギ

ャップ」日本物理学会(徳島大学, 2013年9月)

松本正茂, 左右田稔, 益田隆嗣「異方性の強い整数スピン系における磁場・圧力誘起量子相転移とマルチフェロイクスの理論」日本物理学会(徳島大学, 2013年9月)

古賀幹人, 松本正茂, 楠瀬博明「近藤効果と外場による三角形三重量子ドット内スピン・電荷分布の制御」日本物理学会(徳島大学, 2013年9月)

M. Matsumoto, M. Soda, and T. Masuda, "Theoretical Study on Multiferroic Properties in Integer Spin Systems with Large Single-Ion Anisotropy", International Conference on Strongly Correlated Electron Systems, 2013, August, Tokyo

M. Koga, M. Matsumoto, and H. Kusunose, "Triangular Triple Quantum Dot: A Multiferroic Kondo System", International Conference on Strongly Correlated Electron Systems, 2013, August, Tokyo

M. Soda, M. Matsumoto, S. Gvasaliya, M. Mansson, A. Zheludev, S. Kawamura, K. Nakajima, and T. Masuda, "Neutron Scattering Study of Magnetic Excitations in Multiferroics  $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ ", International Conference on Strongly Correlated Electron Systems, 2013, August, Tokyo

古賀幹人, 松本正茂, 楠瀬博明「三角形三重量子ドットの近藤効果による誘起電気分極」日本物理学会(広島大学, 2013年3月)

松本正茂, 長谷川義訓「スピントライマー系における磁気励起の理論II」日本物理学会(横浜国立大学, 2012年9月)

長谷川卓哉, 木野亮, 佐藤輔, 青木謙人, 伊藤龍亮, 保坂朋宏, 黒江晴彦, 関根智幸, 木原工, 徳永将史, 長谷正司, 竹端寛治, 北澤英明, 岡邦彦, 伊藤利充, 永崎洋, 松本正茂「マルチフェロイック物質  $\text{Cu}_3\text{Mo}_2\text{O}_9$  の強磁場磁化・分極測定」日本物理学会(横浜国立大学, 2012年9月)

長谷川義訓, 松本正茂「スピントライマー系における磁気励起の理論」日本物理学会(関西学院大学, 2012年3月)

長谷川卓哉, 保坂朋宏, 伊藤龍亮, 八馬傑, 黒江晴彦, 関根智幸, 木原工, 徳永将史, 長谷正司, 岡邦彦, 伊藤利充, 永崎洋, 松本正茂「マルチフェロイック物質  $\text{Cu}_3\text{Mo}_2\text{O}_9$  の強磁場磁化・分極測定」日本物理学会(関西学院大学, 2012年3月)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

松本 正茂 (MATSUMOTO, Masashige)

静岡大学・理学研究科・教授  
研究者番号：20281058

(2)研究分担者

古賀 幹人 (KOGA, Mikito)  
静岡大学・教育学部・教授  
研究者番号：40324321

楠瀬 博明 (KUSUNOSE, Hiroaki)  
愛媛大学・理工学研究科・准教授  
研究者番号：00292201

(3)連携研究者

関根 智幸 (SEKINE Tomoyuki)  
上智大学・理工学部・教授  
研究者番号：60110722

黒江 晴彦 (KUROE Haruhiko)  
上智大学・理工学部・准教授  
研究者番号：40296885

木村 尚次郎 (KIMURA Shojiro)  
東北大学・金属材料研究所・准教授  
研究者番号：20379316