

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 1 日現在

機関番号：82401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2011～2015

課題番号：23540397

研究課題名(和文)磁性体中のスピンの量子ネマティック状態における普遍的特性とダイナミクスの解明

研究課題名(英文)Characteristics and dynamics of spin nematic states in magnets

研究代表者

桃井 勉 (Momoi, Tsutomu)

国立研究開発法人理化学研究所・古崎物性理論研究室・専任研究員

研究者番号：80292499

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：スピンネマティック状態は、スピン液体的な性質と固体(従来型の磁気秩序状態)的な性質を併せ持つ新奇な量子状態である。1) 固体ヘリウム3 薄膜の三角格子多体スピン交換模型、2) 擬1次元銅酸化物磁性体の擬1次元ジグザグ鎖スピン模型、3) スピネル型クロム化合物のパイロクロア格子 $S=3/2$ スピン模型を理論的に調べ、スピンネマティック相の出現を明らかにした。

また、磁気励起とダイナミクスの解明のために、スピンネマティック状態の平均場理論を構築し、揺らぎの効果を取り込み、スピンネマティック状態の磁気励起構造(特に動的スピン相関関数)を求めた。さらに、NMRの核磁気緩和率及び比熱の低温での温度依存性を議論した。

研究成果の概要(英文)：Spin nematics are novel quantum states of matter, which possess both liquid-like character and solid-like magnetically ordered character. We studied the following theoretical models, thereby showing the existence of spin nematic phases: 1) the triangular-lattice multiple-spin exchange model for solid He 3 thin films, 2) a quasi-one-dimensional zigzag spin model for quasi one-dimensional cuprate spin systems, 3) a pyrochlore-lattice $S=3/2$ spin model for chromium spinel oxides. To study magnetic excitations and dynamics in the spin nematic state, we constructed a mean-field theory. Taking account of fluctuations, we studied magnetic excitations, calculating the dynamical structure factor. We further derived temperature dependence of the NMR relaxation rate and the specific heat at low temperatures.

研究分野：物理学

キーワード：物性理論 スピンネマティック相 三角格子 ジグザグ鎖 多体スピン交換模型 動的物理量 フラストレート 磁性体 磁性

1. 研究開始当初の背景

2次元固体 ^3He 、 π -BEDT-TTF 有機物質及び NiGa_2S_4 等の磁気フラストレーションの強い三角格子磁性体において、スピン秩序を持たない量子スピン液体的な振る舞いが観測されており、量子的なスピン無秩序状態の理論が待望されている。これまでの理論研究は、反強磁性ハイゼンベルグ相互作用の競合により磁気フラストレーションが生じる場合を対象にしていた。しかし、自然界のフラストレート磁性体には、強磁性相互作用と反強磁性相互作用が共存・競合する場合が多い。例えば、近年、マルチフェロイクスを示すことが発見され注目を集める酸素辺共有1次元鎖 (LiCuVO_4 等) や、スピンギャップを持つ擬2次元正方格子化合物 (CuCl) LaNb_2O_7 等では、金森・Goodenough 則により強磁性相互作用が生じる。先に挙げた2次元固体 ^3He や NiGa_2S_4 でも最近接相互作用は強磁性的である。2次元固体 ^3He の核磁性では、3体のリング交換相互作用により強い強磁性相互作用が生じており、ギャップレスの量子スピン液体状態の近傍に強磁性相が観測されている。強磁性揺らぎの強いフラストレート磁性体の理論研究は手つかずで、解明が望まれている。

ごく最近、我々は理論計算により、磁気フラストレーションを含むスピン1/2の量子スピン系において、強磁性相の近傍にスピン秩序のない液体的スピンネマティック状態が現れることを明らかにした。進行中の研究から、かなり一般的にフラストレート磁性体において強磁性相の隣にスピンネマティック相が現れることが予想されており、その出現条件・出現機構の解明が待たれている。また、スピンネマティック相 (あるいは高次のスピン多極子相) の熱力学量をはじめとする低温における特徴的物性は未解明であり、その理論的解明が待たれる。固体 ^3He 薄膜、 $(\text{CuCl})\text{LaNb}_2\text{O}_7$ 、 LiCuVO_4 等、スピンネマティック相の実現が期待される物質が沢山存在するにもかかわらず、実験的検証が難しい大きな理由は、ネマティック状態固有の基礎物性の理論的解明がなされていないことにある。特に、実験的検証のためには、ダイナミクス特性の理解が必要である。

2. 研究の目的

幾何学的フラストレーションを持つ磁性体において、マグノン対形成機構が引き起こすスピンネマティック状態 (あるいはスピン多極子状態) が、強磁性相近傍に一般的に出現することを示す。(複数スピンのテンソル演算子を反対称化したものがカイラル自由度、対称化したものがスピンネマティック自由度である。) この状態は、スピン秩序もスピンの結晶化も無い量子液体的状態である。これまで単に量子スピン液体状態と思われてきた非磁性状態における隠れた秩序の存在を明らかにすると共に、量子スピン液体状態の再分類を行なう。また、スピンネマティ

ック相の静的および動的物理量の特徴を解明し、実験による検出方法を提案する。

3. 研究の方法

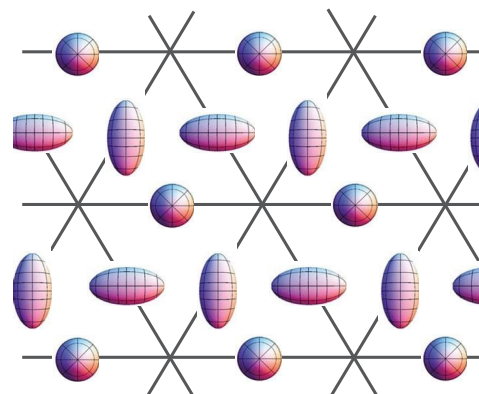
(1) 数値計算と解析計算手法の両面からフラストレート強磁性体におけるボンド型スピンネマティック相の出現を検証する。具体的には厳密対角化法と、スピンネマティック平均場解からの変分モンテカルロ計算を行い、精度の良い数値的評価を行う。一方で、スピン波展開を用いた2マグノン不安定性の評価からネマティック相の相図を得る解析計算を行う。

(2) スピンネマティック相の基礎物性を明らかにするために、フェルミオン表示により、粒子対形成機構を用いてスピンネマティック状態を記述し、スピン相関関数等の各種応答・動的観測量の振る舞いを導出する。

4. 研究成果

スピンネマティック状態は、スピン液体的な性質とスピン固体 (従来型の磁気秩序状態) 的な性質の両方を兼ね備えたスピンの「液晶状態」とも呼べるような新奇な量子状態である。スピンネマティック相の出現を理論的に検証すると同時に、その励起構造とダイナミクス特性を明らかにするために、以下の研究を行った。

(1) 固体ヘリウム3薄膜の核磁性を記述する三角格子多体スピン交換模型において、スピンネマティック状態が基底状態に現れることを示した。また、この模型は、固体ヘリウム3薄膜の磁化曲線中に観測された狭い磁化1/2プラトーを良く再現することを確認した。この結果から、固体ヘリウム3薄膜において、スピンネマティック状態が実現していることが期待される。

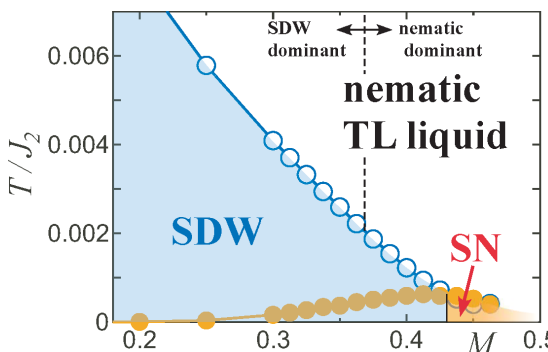


図：スピンネマティック秩序の模式図。スピンは格子点に存在するが、ボンド上に秩序構造が出現する。

(2) ボンド型スピンネマティック状態を記述する平均場理論を構成した。この理論を用いて変分モンテカルロ計算手法を構築し、正方格子上の J_1 - J_2 量子スピン模型を研究した。

その結果、最近接相互作用 J_1 が強磁性の時、相互作用 J_1 と J_2 の競合が強い領域において、スピネマティック相が安定に出現することを確かめた。更に、この理論に立脚して、平均場からの揺らぎの効果を $1/N$ 展開法により取り込むことにより、スピネマティック状態の磁気励起構造（特に動的スピン相関関数）の振る舞いを明らかにし、NMR の核磁気緩和率及び比熱の低温での温度依存性を議論した。

(3) 近年、擬 1 次元銅酸化物フラストレート磁性体 (LiCuVO_4 など) は、マルチフェロイクスおよび多極子秩序相を示す系として注目を集めている。これらは全て最近接強磁性相互作用 J_1 と次近接反強磁性相互作用 J_2 を持つ J_1 - J_2 スピン鎖構造を有している。1 次元ジグザグ鎖は絶対零度において、スピネマティック朝永ラッティンジャ液体及びスピン密度波液体が現れることが知られている。このモデルに 3 次元鎖間結合を加えた時、有限温度においてどのようにスピネマティック及びスピン密度波の相関が成長するかを解析するために、摂動的に有効ハミルトニアンを導出した。スピン密度波は、鎖間相互作用の 1 次摂動で効いてくるのに対し、スピネマティック相関は、2 次摂動から作られる。その結果、多くの場合、鎖間相互作用の効果で、スピン密度波が強くなることが分かった。また、有限温度相図を、定量的に求めた。



図： 擬 1 次元ジグザグ鎖におけるスピン密度波(SDW)相とスピネマティック(SN)相の有限温度相図。

(4) フラストレートした磁性体における複数の波数状態の重ね合わせにより実現する多重 Q 状態を、希薄ボーズ気体の理論を用いて解析的に調べた。具体的に、三角格子上の J_1 - J_2 モデルおよび J_1 - J_3 モデルに面間相互作用を考慮した系において、飽和磁場近傍における有効エネルギーを漸近的に厳密に求め、エネルギー最小解を求めることから磁性状態を決め、これらのモデルの飽和磁場近傍における基底状態相図を得た。また、3 次元から 2 次元へのクロスオーバーを調べた。一つの波数状態だけに凝縮した状態に相当するスパイラル状態相の他に、2 つの波数状態に同じ密度で凝縮した相が出現することが分かった。

さらに、この状態には、全運動量が 0 の場合と、有限になる場合の 2 種類の相が存在する。前者は FAN 相と呼ばれる共面的な状態である。後者は非共面的な状態であり、カイラル秩序が空間的にストライプ状に存在する。

(5) パイロクロア反強磁性体であるスピネル型クロム化合物 MCr_2O_4 ($M=\text{Zn}, \text{Cd}, \text{Hg}$) において実験で観測された飽和磁場近傍の新奇な高磁場相を理解するために、パイロクロア格子上的 $S=3/2$ 反強磁性スピンモデルの磁場中の磁気相図を調べた。特に、スピンと格子揺らぎの相互作用を考慮した有効相互作用（双 2 次型スピン相互作用）がある場合にスピンの量子効果を考慮して調べた。飽和磁場におけるマグノン励起の解析から、古典スピンモデルで得られる磁気相より高磁場領域において、量子効果によりマグノンが束縛対を形成することが分かった。飽和磁場直下に、量子的なスピネマティック状態相が出現することを明らかにした。スピンのサイズが $S=3/2$ の場合、及び $S=1$ の場合の磁場中相図を作成し、スピンのサイズ依存性を議論した。クロム化合物に対応するスピン $S=3/2$ のモデルでは、飽和磁場近傍のみに、スピネマティック相が出現することを示した。この結果は、クロム化合物の実験で観測されている新規相の磁場領域と良く合うことから、この新規相がスピネマティック相であることが期待される。

(6) 一次元量子スピン系において知られているハルデン相を拡張し、 $\text{SU}(3)$ 対称性をもつ一次元系にあらわれる Z_3 トポロジカル相について解析を行った。群コホモロジーによるトポロジカル相の一般論を応用し、 Z_3 トポロジカル相を実現する $\text{SU}(3)$ スピンのハミルトニアンを導出した。我々はより一般の $\text{SU}(3)$ スピンハミルトニアンを DMRG により解析し、その相図とトポロジカル相転移点への理解を得た。

(7) フラストレート磁性体 volborthite $\text{Cu}_3\text{V}_2\text{O}_7(\text{OH})_2(\text{H}_2\text{O})_2$ における単結晶の結晶構造を用い第 1 原理計算を行い、スピン相互作用を評価した。その結果、3 つの隣接するスピンの強く相互作用しトライマーを作る磁性体になっていることが分かった。このモデルからスタートして、低温におけるスピン有効モデルを導出した。このスピンモデルは、磁化 $1/3$ に広い磁化プラトーを持ち、実験で観測されている $1/3$ 磁化プラトーを良く再現する。磁化 $1/3$ 以下の領域は、空間異方性を持つ正方格子上的 J_1 - J_2 - J_2' モデルで記述されることが分かった。このモデルは、磁化 $1/3$ の磁場直下においてマグノン対の凝縮により出現するスピネマティック相を持つ。実験で磁化 $1/3$ の直下に新奇な相が観測されており、この相がネマティック相であると予想した。

(8) 強磁性相互作用を持つフラストレートした磁性体に現れる新奇な磁性相を調べた。古典モンテカルロシミュレーションとスピン波展開を用い、磁場中の磁性相を調べた。その結果、フラストレート反強磁体の場合とは異なる多くの新しい振る舞いを見出した。まず、ある特定の相互作用パラメータでは、磁場中の有限温度相図が、1/3 プラトー相も含め三角格子反強磁性体の磁場中相図とほぼ同じになることを示した。次に、相互作用パラメータをこの点から、古典基底状態が運動量空間の曲線上に縮退し存在するパラメータ点に移動すると、相図に二つの新しい相が出現することが分かった。一つは、有限温度におけるスピン液体になっており、スピン構造因子 $S(q)$ にリング構造が現れる状態である。もう一つは、渦結晶を持つ多重Q状態になっている。これらの振る舞いをエントロピー効果から議論した。

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 12 件)

L. Seabra, P. Sindzingre, T. Momoi, N. Shannon, Novel phases in a square-lattice frustrated ferromagnet: 1/3-magnetisation plateau, helicoidal spinliquid and vortex crystal, *Phys. Rev. B* **93**, pp. 085132-1-13 (2016), 査読有.

DOI: 10.1103/PhysRevB.93.085132

T. Momoi, Detecting fingerprints of bimagnon formation in frustrated ferromagnetic chains, *JPSJ News and Comments* **12**, p. 9 (2015), 査読無.

DOI: 10.7566/JPSJNC.12.09

G. Marmorini, T. Momoi, Magnon condensation with finite degeneracy on the triangular lattice, *Phys. Rev. B* **89**, pp. 134425-1-11 (2014), 査読有.

DOI:10.1103/PhysRevB.89.134425

T. Morimoto, H. Ueda, T. Momoi, A. Furusaki, Z_3 symmetry-protected topological phases in the SU(3) AKLT model, *Phys. Rev. B* **90**, pp. 235111-1-21 (2014), 査読有.

DOI: 10.1103/PhysRevB.90.235111

M. Sato, T. Hikihara, T. Momoi, Spin nematic and spin density wave orders in spatially anisotropic frustrated magnets in magnetic fields, *Phys. Rev. Lett.* **110**, pp. 077206-1-5 (2013), 査読有

DOI: 10.1103/PhysRevLett.110.077206

R. Shindou, S. Yunoki, T. Momoi, Dynamical spin structure factors of quantum spin nematic states, *Phys. Rev. B* **87**, pp. 054429-1-22 (2013), 査読有.

DOI: 10.1103/PhysRevB.87.054429

H. T. Ueda, T. Momoi, Nematic phase

and phase separation near saturation field in frustrated ferromagnets, *Phys. Rev. B* **87**, pp. 144417-1-13 (2013), 査読有.

DOI: 10.1103/PhysRevB.87.144417

桃井 勉, 久保 健, 多体交換相互作用が創る固体ヘリウム 3 薄膜の磁性, *固体物理*, **47**, pp. 207-214 (2012), 査読有.

M. Sato, T. Hikihara, T. Momoi, NMR relaxation rate in the field-induced octupolar liquid phase of spin-1/2 J1-J2 frustrated chains, *J. Phys.: Conf. Ser.* **320**, pp. 012014/1-6 (2011), 査読有.

DOI: 10.1088/1742-6596/320/1/012014

R. Shindou, S. Yunoki, T. Momoi, Projective studies of spin nematics in a quantum frustrated ferromagnet, *Phys. Rev. B* **84**(13), pp. 134414/1-15 (2011), 査読有.

DOI: 10.1103/PhysRevB.84.134414

L. Seabra, T. Momoi, P. Sindzingre, N. Shannon, Phase diagram of the classical Heisenberg antiferromagnet on a triangular lattice in an applied magnetic field, *Phys. Rev. B* **84**(21), pp. 214418/1-14 (2011), 査読有.

DOI: 10.1103/PhysRevB.84.214418

T. Momoi, P. Sindzingre, K. Kubo, Spin nematic order in multiple-spin exchange models on the triangular lattice, *Phys. Rev. Lett.* **108**(5), pp. 057206/1-4 (2011), 査読有.

DOI:10.1103/PhysRevLett.108.057206

[学会発表](計 19 件)

L. Seabra, P. Sindzingre, 桃井 勉, N. Shannon, 正方格子フラストレート強磁性体における order by disorder, 日本物理学会 第 71 回年次大会, 2016 年 03 月 20 日, 東北学院大学(仙台市・宮城県)
O. Janson, 古川俊輔, 桃井 勉, P. Sindzingre, J. Richter, K. Held, 結合トライマーモデルによるボルボサイトの磁気的性質の解析, 日本物理学会 第 71 回年次大会, 2016 年 03 月 19 日, 東北学院大学(仙台市・宮城県)

桃井 勉, (招待講演)正方格子フラストレート強磁性体における 1/3 磁化プラトー、ヘリコイダルスピン液体、ポーテックス結晶、東京大学物性研究所短期研究会「スピン系物理の深化と最前線」、2015 年 11 月 17 日、東京大学物性研究所(柏市・千葉県)

桃井 勉, (招待講演)磁性体中のネマティック状態、早稲田大学高等研究所 Top Runners' Lecture Collection of Science 「磁性体研究の最前線: フラストレーションと強磁場が生む量子現象」、2015 年 04 月 30 日、早稲田大学(新宿区・東京都)
桃井 勉, (招待講演)フラストレート磁性

体における磁場誘起スピンネマティック相の理論、日本物理学会第70回年次大会シンポジウム、2015年03月21日~2015年03月21日、早稲田大学(新宿区・東京都)

T. Momoi, E. Takata, M. Oshikawa, Magnon pairing in pyrochlore antiferromagnets, International Conference on Highly Frustrated Magnetism 2014, 2014年07月07日~2014年07月11日, Cambridge (England)

E. Takata, T. Momoi, M. Oshikawa, Theory of quantum states under high magnetic field in $S=3/2$ pyrochlore antiferromagnets, The OIST International Workshop on Novel Quantum Materials and Phases, 2014年05月14日~2014年05月17日、沖縄科学技術大学(恩納村・沖縄県)

高田えみか、桃井 勉、押川正毅、パイロクロア反強磁性体における双二次相互作用がもたらすマグノン束縛状態に関する理論的研究、日本物理学会 第69回年次大会、2014年03月27日、東海大学 湘南キャンパス(平塚市・神奈川県)

桃井 勉、(招待講演)フラストレート磁性体におけるネマティック状態、統計力学の最近の展開、2014年03月03日、東京大学(文京区・東京都)

T. Momoi, E. Takata, M. Oshikawa, Magnon pairing in pyrochlore antiferromagnets, International Workshop on Frustration and Topology in Condensed Matter Physics, 2014年02月12日, Tainann (Taiwan)

桃井 勉、高田えみか、押川正毅、パイロクロア反強磁性体の飽和磁化近傍量子相、物性理論研究会、2013年09月29日、ホテル四季の里(神山町・徳島県)

高田えみか、桃井 勉、押川正毅、 $S=3/2$ パイロクロア反強磁性体の飽和磁化近傍量子相の理論的研究、日本物理学会2013年秋季大会、2013年09月27日、徳島大学(徳島市・徳島県)

G. Marmorini, T. Momoi, High magnetic field phases of the J_1 - J_2 and J_1 - J_3 triangular antiferromagnet, 日本物理学会 2013年秋季大会、2013年09月25日、徳島大学(徳島市・徳島県)

桃井 勉、(招待講演)フラストレート磁性体における量子スピンネマティック状態、京大基研研究会「量子スピン系の物理」、2012年11月12日~2012年11月14日、京都大学(京都市・京都府)

T. Momoi, A theory of spin nematics in $S=1/2$ frustrated ferromagnets, Highly frustrated magnetism 2012, 2012年06月04日~2012年06月08日, Hamilton (Canada)

T. Momoi, Spin nematic order in the

multiple-spin exchange model on the triangular lattice, Highly frustrated magnetism 2012, 2012年06月04日~2012年06月08日, Hamilton (Canada)

L. Seabra, 桃井 勉, P. Sindzingre, N. Shannon, 磁場中三角格子古典ハイゼンベルグ模型の相転移、日本物理学会 第67回年次大会、2012年3月25日、関西学院大学(西宮市・兵庫県)

M. Sato, T. Hikihara T. Momoi, Competition between spin nematic and spin density wave orders in spatially anisotropic frustrated magnets in magnetic fields, APS March Meeting, 2012年2月28日, Boston (USA)

桃井 勉、P. Sindzingre、久保 健、三角格子多体スピン交換模型におけるスピンネマティック状態の秩序変数、日本物理学会 2011年秋季大会、2011年9月22日、富山大学(富山市・富山県)

[その他]

研究紹介 web page:

Getting to the heart of frustrated magnetism

<http://www.rikenresearch.riken.jp/eng/research/6966>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

桃井 勉 (MOMOI, Tsutomu)

国立研究開発法人理化学研究所・古崎物性理論研究室・専任研究員

研究者番号: 80292499

(2) 連携研究者

進藤龍一 (SHINDOU, Ryuichi)

国立研究開発法人理化学研究所・古崎物性理論研究室・客員研究員

研究者番号: 60571932

(3) 研究協力者

Philippe Sindzingre

Nic Shannon