

磁気多極子液体相における核磁気共鳴の理論

公募研究「低次元フラストレート系における
カイラル及び多極子秩序とその動的観測量」

青山学院大¹、群馬大²、理研³ 佐藤正寛¹、引原俊哉²、桃井 勉³

強磁性最近接相互作用 J_1 と反強磁性次近接相互作用 J_2 を持つ J_1 - J_2 スピン鎖に磁場を加えると、非常に広いパラメータ領域で 3 種類の磁気多極子液体相 (4, 8, 16 極子) が現れることが理論的に示されている。幸運なことに対応する擬 1 次元銅酸化物磁性体も幾つか存在する。標準的な実験で磁気多極子を直接観測することは難しいが、核磁気共鳴緩和率に多極子相の特徴が現れることを予言できる。この特徴は磁気多極子相の探索に役立つと考えられる。

磁気多極子とフラストレーション

重い電子系では昔から電気・磁気多極子秩序が盛んに議論されているが、近年、格子上のスピンの模型や実際の磁性体においても磁気多極子秩序(の可能性)が精力的に研究されている。N 次の磁気多極子秩序変数(オーダーパラメータ)は $N(\geq 2)$ 個のスピンの演算子 S_j のテンソル積で定義される。以下、N 次の秩序変数が有限の値を持ち、かつ、N-1 次以下全ての秩序変数の値がゼロの状態を、N 次の多極子状態と呼ぶことにしよう。例えば空間反転について対称な 2 次多極子状態(スピンネマティック状態とも呼ぶ)の実現には、 $\langle S_j^+ S_{j+1}^+ \rangle$ が有限であると同時に、スピン(双極子)モーメント $\langle S_j \rangle$ がゼロである必要がある。一方、標準的な磁性体は十分低温で $\langle S_j \rangle$ が有限の値をもつため、多極子状態を発現させるには、通常の磁気秩序化を抑制する必要がある。故に、フラストレートスピンの系は、磁気多極子状態を実現する有望な候補として期待される。

スピン 1/2 の系

ここで、スピン 1/2 の磁性体の磁気多極子秩序を考えよう。スピン 1/2 演算子は 2 乗すると定数になるため、磁気多極子秩序変数は必然的に異なる複数サイトのスピンの積で定義されることになる。これが有限になるには当然サイト間の相互作用が重要な役割を果た

す。つまり、スピン 1/2 の多極子秩序は本質的に多体問題と言える。サイトではなくボンダ上に秩序が定義されることは、重い電子系や冷却原子系の多極子と質的な違いである。

スピン 1/2 の J_1 - J_2 ジグザグ鎖

ここから我々が最近研究している強磁性最近接相互作用 $J_1 (< 0)$ と反強磁性次近接相互作用 $J_2 (> 0)$ を持つフラストレートスピン 1/2 鎖について考えよう。近年、この J_1 - J_2 鎖において S^z 方向に磁場 H を印加すると、飽和磁場近傍の非常に広い 2 次元パラメータ空間 ($J_1/J_2, H$) で 2, 3, 4 次の磁気多極子 (4, 8, 16 極子) 演算子 $S_j^+ S_{j+1}^+$, $S_j^+ S_{j+1}^+ S_{j+2}^+$, $S_j^+ S_{j+1}^+ S_{j+2}^+ S_{j+3}^+$ が反強的な準長距離秩序を示すことが明らかにされた [1,2]。基底状態相図を図 1 に示す。磁場と垂直面内のスピンの構成された複数サイトに渡る多極子秩序が発現していることに注意されたい。この 3 相では、多極子と共に磁場方向のスピン S_j^z も非整合な準長距離秩序を示すが、磁場と垂直面内のスピン S_j^+ は指数関数型の短距離相関である。つまり 1 マグノン励起に有限のギャップが存在する。それぞれ、マグノン 2 個、3 個、4 個の束縛状態が凝縮することで 2, 3, 4 次の多極子相が形成される [1]。通常の 1 次元量子磁性体では 1 マグノンが凝縮して朝永ラッティンジャー (TL) 液体相が実現するが、 J_1 - J_2 鎖の場合はマ

グノン束縛状態の液体が実現するのだ。この意味で、我々はこの3相を2、3、4次の**磁気多極子 TL 液体相**と呼ぶ。

幸運なことに、この単純なフラストレート J_1 - J_2 模型で記述されると思われる擬1次元銅酸化物磁性体が多数(LiCuVO₄、Rb₂Cu₂Mo₃O₁₂、PbCuSO₄(OH)₂ など)知られている。これらの磁性体に磁場を加えることで多極子液体相が実現できると期待される。

磁気多極子液体の特徴付け

紙面の残りが少ないが、ここからが本題である。 J_1 - J_2 鎖の多極子液体相を実験でどのように検出したらよいか。直接、多極子の情報を得るには、例えば4極子の場合 $\langle S_j^+ S_{j+1}^+ S_k^- S_{k+1}^- \rangle$ のような4点相関を観測する必要がある。しかし標準的な実験手段では普通2点相関の情報しか得られない。多極子は捕まえにくい秩序なのだ。我々は標準的な実験手段で如何に多極子液体の特徴付けが可能かを検討した。前述のように J_1 - J_2 鎖の多極子 TL 液体相は通常の磁場誘起 TL 液体相の拡張と言える。それ故、熱力学量の振舞は両者で非常に似ている。磁化曲線はなめらかで比熱は温度の1次で増加する。”普通”の TL 液体と多極子液体とを区別する方法が重要になる。

我々は核磁気緩和率 $1/T_1$ の温度・磁場依存性に多極子液体固有の特徴が現れることを明

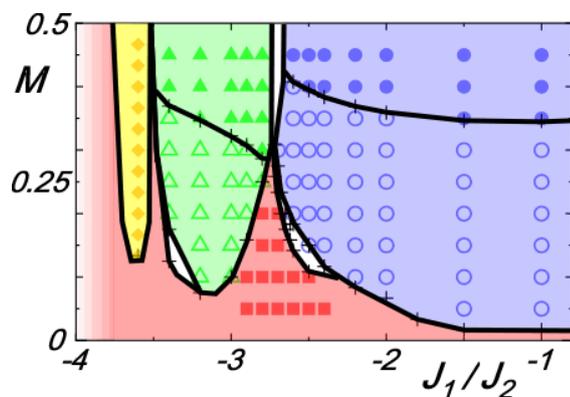


図1：強磁性 J_1 と反強磁性 J_2 を持つスピン 1/2 鎖の磁場中基底状態相図。縦軸が磁化 $M = \langle S_j^z \rangle$ 、横軸が J_1/J_2 。青、緑、黄が各々4,8,16 極子 TL 液体相。赤がカイラル秩序相である。4, 8 極子液体相中には、多極子相関が強い高磁場領域と S^z スピン相関が強い低磁場領域の間のクロスオーバー曲線を示している。

らかにした[3,4]。3つの多極子 TL 液体相では多極子相関が支配的な高磁場領域と、非整合 S^z 相関が支配的な低磁場領域の間に、クロスオーバー曲線が存在する。この曲線を境にして $1/T_1$ も振舞を変え、低磁場側では低温で $1/T_1$ は発散するが、高磁場側では $1/T_1$ はゼロに向かう(図2(a))。これは、通常の TL 液体(図2(b))では磁場によらず常に低温で $1/T_1$ が発散することと明確に異なる。この振舞は多極子液体に1マグノンギャップが存在すること由来する。このような $1/T_1$ の振舞が観測されれば、多極子液体相の強い(間接的)証拠と言えよう。これに加え、 $1/T_1$ の磁場依存性[4]や動的構造因子のピーク位置[3]にも多極子 TL 液体の特徴が現れることが分かった。最近、LiCuVO₄ では高磁場・低温で3次元スピンネマティック秩序の可能性が指摘されている[5]。今後のさらなる実験の進展が期待される。

- [1] T. Hikihara *et al.*, PRB **78**, 144404 (2008).
- [2] J. Sudan *et al.*, PRB **80**, 140402(R) (2009).
- [3] M. Sato *et al.*, PRB **79**, 060406(R) (2009).
- [4] M. Sato *et al.*, PRB **83**, 064405 (2011); arXiv: 1101.1375.
- [5] L. Svistov *et al.*, JETP Lett. **93**, 24 (2011).

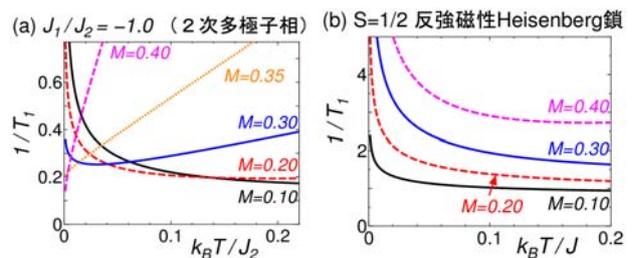
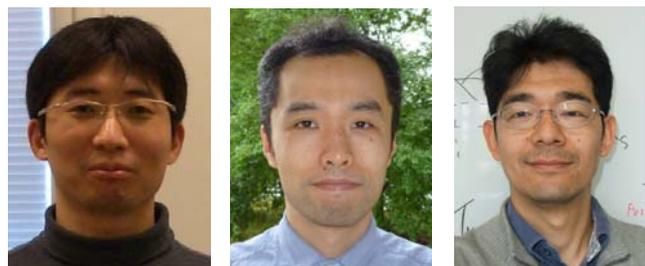


図2： $1/T_1$ の温度依存性; (a) J_1 - J_2 スピン鎖の2次多極子(ネマティック)TL 液体相、(b)スピン 1/2 反強磁性鎖。(a)では、 $1/T_1$ の振舞が高磁化と低磁化で明らかに異なる。



左から、佐藤(青学)、引原(群馬大)、桃井(理研)。