

# 一次元量子スピン系のスピントロップ

## — 量子効果のもたらす新しい磁場中相転移 —

姫路工業大学 理学部 坂井 徹<sup>1</sup>

磁化容易軸タイプの異方性  $D \sum_j (S_j^z)^2$  ( $D < 0$ ) を持つ反強磁性体に、この軸に平行な磁場をかけた場合、ある臨界磁場でスピントロップと呼ばれる一次相転移を示すことが知られている。このスピントロップに対応する磁場中相転移は、一次元の量子スピン系では、強い量子ゆらぎのために、磁化のジャンプを伴わない、2回の二次相転移になり得ることを、有限クラスターの数値対角化を用いた解析により示す。この2つの相転移の間には、古典系では現れることのない、磁場に平行な incommensurate SDW が実現するものと考えられる。

## 1 Introduction

近年、強磁場技術のめざましい進歩に伴い、磁場中で巨視的に観測される量子効果の研究が精力的に進められている。中でも、磁化曲線のプラトーという視覚的な形でとらえられる、磁場中で誘起されるスピギャップの問題が、最近たいへん注目されている。一方、これとは逆に、磁化がジャンプを示す、メタ磁性相転移の問題も、磁性研究の重要な課題のひとつである。とくに、磁化容易軸を持つ反強磁性体に、この軸と平行な磁場をかけた場合、ある臨界磁場で磁化が不連続な飛びを見せる現象は、最も簡単なメタ磁性機構のひとつとして、古くからよく知られている。この臨界磁場では、磁場に平行だった部分格子磁化が、急に垂直に向きを変える一次相転移が起こることから、スピントロップと呼ばれている。[1] このように、一見古典的な描像から容易に理解されるスピントロップが、量子効果によってどのような修正を受けるのかを考えることが、本稿の目的である。

量子モンテカルロシミュレーションと数値対角化を用いた最近の研究 [2] によると、スピンの交換相互作用にイジング的な異方性を持つ  $S = 1/2$  のハイゼンベルグ反強磁性体 ( $XXZ$  模型) は、二次元正方格子と三次元立方格子の場合には、古典スピン系と同様に、磁化のジャンプを伴うスピントロップが起きることが報告されている。ただし、磁化の飛びは、量子ゆらぎにより縮んでいる。一方、最も顕著な量子効果の期待される  $S = 1/2$  の一次元鎖では、磁化曲線は連続につながり、そのかわりに臨界磁場  $H_{c1}$  付近で磁化  $m$  が

$$m \sim (H - H_{c1})^{1/2} \quad (1)$$

のように振る舞う二次相転移が起こることが、ベータ仮説の厳密解 [3] により確かめられている。つまり、一次元系だけは、強い量子ゆらぎのために、磁化のジャンプが消え、相転移の次数が一次から二次になってしまうことがわかる。一般に、量子効果は次元が低いほど、そしてスピン量子数が小さいほど強いので、上記の事実を考えると、2次元と3次元では、任意の  $S$  で一次転

<sup>1</sup>E-mail:sakai@sci.himeji-tech.ac.jp

移になることが期待される。一方、一次元系では、 $S = 1/2$  では二次転移、古典極限  $S \rightarrow \infty$  では一次転移であることがわかっているだけで、どこに臨界スピン  $S_c$ があるのかは、まだ知られていない。そこで、本研究では、一次元の  $S \geq 1$  の系を調べる。

## 2 イジング的異方性 $D$ を持つ $S = 1$ 反強磁性鎖

現実的な問題を考えるため、まず、

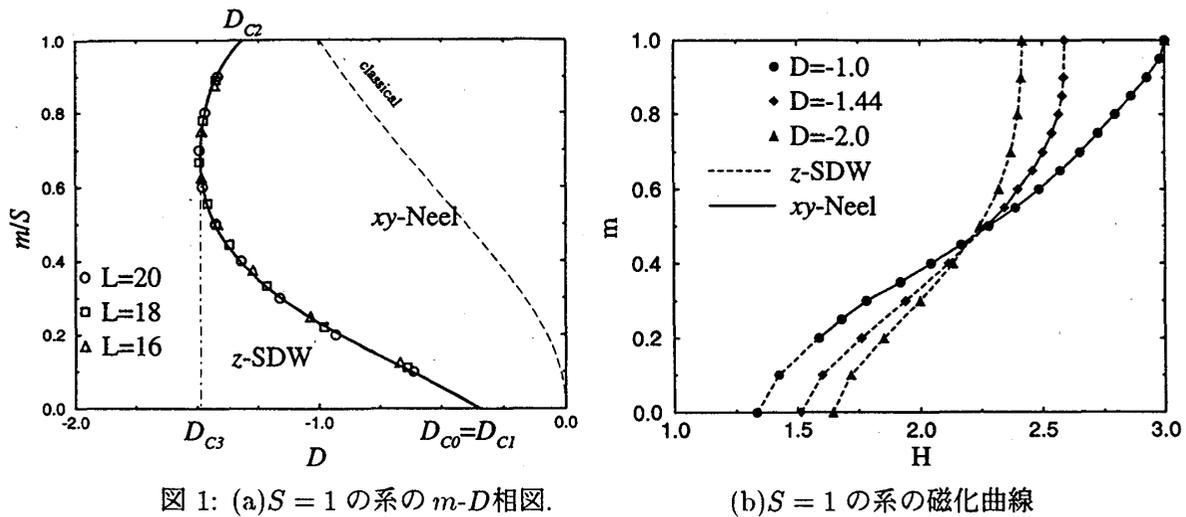
$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_Z, \quad \mathcal{H}_0 = \sum_j \mathbf{S}_j \cdot \mathbf{S}_{j+1} + D \sum_j (S_j^z)^2, \quad \mathcal{H}_Z = -H \sum_j S_j^z, \quad (2)$$

というハミルトニアンで記述される、一軸異方性を持つ  $S = 1$  の系の磁化過程を考える。[4] 異方性はイジング的な場合だけを扱うので、 $D < 0$  とする。 $D$ が小さい場合、この系は Haldane 相にあり、Haldane ギャップに相当する臨界磁場付近で、(1) と同じ形の二次転移を示すことが知られている。一方、 $D$ が負で非常に大きい場合は、各スピンの  $+1$  か  $-1$  の 2 状態しか取れなくなるため、異方的な  $S = 1/2$  の系と等価になる。したがって、この場合は、イジングギャップに相当する臨界磁場付近で、やはり (1) のように振る舞う。このように、磁化の立ち上がり方だけを見ると、 $D$ が負で大きい場合も小さい場合も、定性的には同じである。しかし、磁化過程の性質は違う。量子反強磁性鎖の磁化過程は、磁化を粒子密度とみなす朝永-Luttinger 液体で記述されることが知られている。 $D$ が小さい場合には、ギャップレスの準粒子励起が  $S_j^{\pm}$  で記述されるのに対し、 $D$ が負で大きい場合には、各  $S_j^z$  が  $+1$  か  $-1$  しか取れなくなるため、ギャップレスの励起は  $(S_j^z)^2$  に変わるのである。これに伴って、準粒子密度は、前者の場合には磁化そのものである  $m$  であるのに対し、後者の場合には  $m/2$  となり、 $2k_F$  ソフトモードの位置も、 $2k_F = 2m\pi$  から  $2k'_F = m\pi$  に変わる。このように、 $D$ が負で小さい場合と大きい場合とでは、性質の異なる朝永-Luttinger 液体になるので、当然、その間には相境界が存在するはずである。 $S_j^{\pm}$  で記述される励起は、 $D$ が小さい相ではギャップレス、 $D$ が負で大きい相ではギャップを持つ。一方、 $2k'_F$  のソフトモードは、その逆の性質を持つので、この二つの励起のギャップの交点から、相境界を決めることができる。数値対角化により、スピン数  $L = 16, 18, 20$  の有限系のギャップの交点を、いろいろな磁化  $m$  に対して求め、プロットしたものが、図 1(a) である。図の  $D_{c1}$  は Haldane 相とネール相の境界で、 $D_{c1} = -0.35$ 、また、 $D_{c2} = -1.32$ 、 $D_{c3} = -1.49$  である。すべての  $D$  で、磁化が立ち上がるときは、(1) の転移が、そして、磁化が飽和するときには、飽和する臨界磁場  $H_{c2}$  で、

$$1 - m \sim (H_{c2} - H)^{1/2} \quad (3)$$

で記述される転移が起こるが、この  $m$ - $D$  相図によると、 $D_{c1} > D > D_{c3}$  においては、もうひとつの臨界磁場  $H_{c3}$  が存在することがわかる。この転移は、イジングユニバーサリティークラスに属する二次転移である。(運良く  $D_{c2} > D > D_{c3}$  となるような物質があれば、相境界の形から、もう一度リエントラント転移が起き得る。)

この二つの朝永-Luttinger 液体の性質を、主たるスピン相関関数の形で表すと、 $D$ が小さい相では、 $\langle S_0^+ S_r^- \rangle \sim (-1)^r r^{-\eta}$ 、負で大きい  $D$  の相では、 $\langle S_0^z S_r^z \rangle \sim \cos(2k'_F r) r^{-\eta_z}$  となる。これら

図 1: (a)  $S = 1$  の系の  $m$ - $D$  相図.(b)  $S = 1$  の系の磁化曲線

が、鎖間の相互作用のある擬一次元系で、どのような長距離秩序をもたらすかという、前者は磁場に垂直なネール秩序、後者は磁場に平行な incommensurate SDW である。そこで、対応する秩序がわかりやすいように、前者を  $xy$ -Néel 相、後者を  $z$ -SDW 相と呼ぶことにする。前者は、普通のスピントロップが起こった後の状態に対応することがわかる。この系の量子効果を直観的に理解するため、古典スピントロップにより磁化がジャンプするラインを図 1(a) の相図の中に波線で示した。一次元の強い量子効果は、このラインを押し下げたばかりでなく、 $z$ -SDW 相という、古典系では生じない状態を作りだし、磁化曲線を連続につないでしまったと考えることができる。

二つの朝永-Luttinger 液体の間の臨界磁場  $H_{c3}$  における転移の性質を調べるため、 $L = 20$  の数値対角化による絶対零度の磁化曲線を図 1(b) に示す。 $z$ -SDW 相を波線、 $xy$ -Néel 相を実線で示してある。 $D = -1.0$  の磁化曲線から、 $H_{c3}$  では、磁化曲線には顕著な異常は何も見られないことがわかる。実際、

$$m - m_{c3} \sim (H - H_{c3})^{1/\delta}, \quad (4)$$

として、サイズスケーリングにより  $\delta$  を決めたところ、 $\delta = 1$  という結果を得た。つまり、この転移は  $H_{c1}$  よりさらに弱い二次転移である。

以上から、負の  $D$  項を持つ  $S = 1$  の一次元反強磁性体で、Haldane 相を除く比較的小さい  $D$  の場合には、スピントロップに対応する二次転移が 2 回引き続いて起こることが示された。なお、今回の解析の範囲では、 $S = 1$  では、一次転移が起こる領域はないことがわかった。

### 3 $S \geq 3/2$ の場合

次に、1 より大きいスピンの系を考えるため、 $S = 3/2$  と  $S = 2$  の系で、同様の解析を行った。[5] 一般の  $S$  では、磁化過程に現れる二つの朝永-Luttinger 液体は、それぞれの励起が  $S_j^+$  と  $(S_j^+)^{2S}$  で記述されるが、これ以外にギャップレス相は出てこないため、 $m/S$ - $D$  相図における相境界は  $S = 1$  の場合と同じ方法で決めることができる。 $S = 3/2$  に対して  $L = 10, 12, 14$ 、 $S = 2$

に対して  $L = 8, 10, 12$  というサイズで数値対角化を行い、相境界を決めた結果を、図 2(a)(b) に、中抜きシンボル (実線で内挿) で示す。この相境界は  $H_{c3}$  の二次転移に相当するが、スピンの大きくなるにつれて、同じ図中に細い波線で示した古典極限の磁化のジャンプのラインに近づいていくように見える。ところが、 $S \geq 3/2$  では、 $D$  が小さい領域で、磁化がジャンプする一次転移が現れる。このことを見るために、ゼーマン項を除いたハミルトニアン  $\mathcal{H}_0$  のスピンあたりのエネルギーを  $\epsilon(m)$  とし、磁化  $m$  での二階微分  $\epsilon''(m)$  を考える。もし  $\epsilon''(m) < 0$  となる領域があれば、磁化はジャンプし、その  $m$  は磁化過程に現れないことになる。スピン数  $L$ 、 $\sum_j S_j^z = M$  という部分空間で、数値対角化で求められる  $\mathcal{H}_0$  の最小固有値を  $E(L, M)$  とすると、 $\epsilon''(m)$  は、

$$L[E(L, M + 2S) + E(L, M - 2S) - 2E(L, M)] / (2S)^2 \sim \epsilon''(m) + O\left(\frac{1}{L^2}\right), \quad (5)$$

という式を使って計算される。ただし、 $m = M/L$  である。サイズ補正を無視して、 $\epsilon''(m) = 0$  となる点を図 2(a)(b) の相図に黒丸で示す。内挿した波線で囲まれた領域が  $\epsilon''(m) < 0$  となる領域である。この領域では、 $m = 0$  から  $xy$ -Néel 相まで、磁化がジャンプする。(途中の磁化からジャンプが起こる可能性もあるが、このような小さな系の対角化からは、正確に断定することは難しい。)

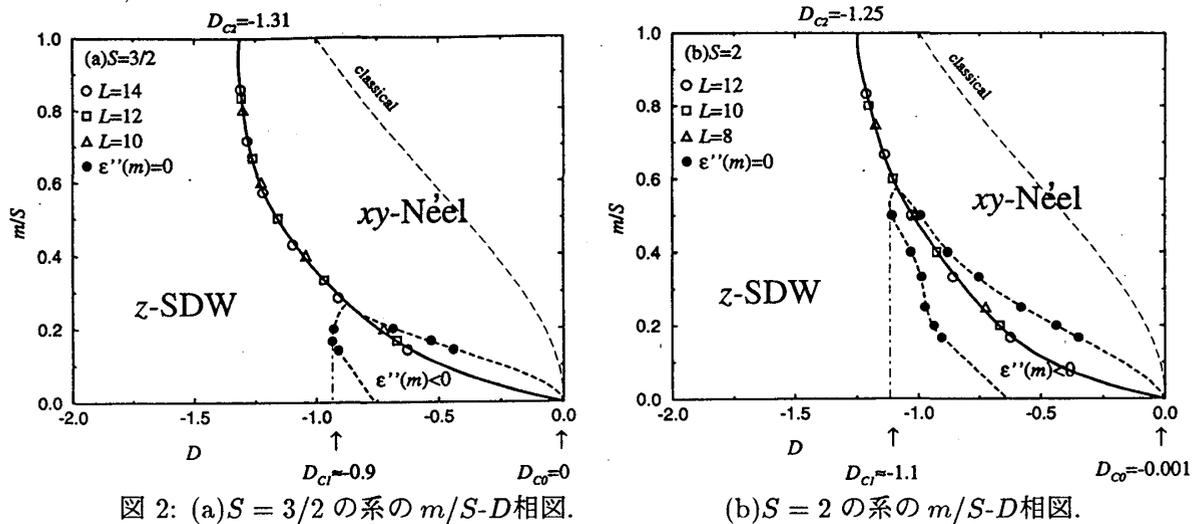


図 2: (a)  $S = 3/2$  の系の  $m/S$ - $D$  相図.

(b)  $S = 2$  の系の  $m/S$ - $D$  相図.

ここで、磁化 0 の基底状態がネール秩序を持つ異方性  $D$  の限界を  $D_{c0}$ 、磁化がジャンプする限界を  $D_{c1}$ 、二つの朝永-Luttinger 液体の相境界をまたぐ二次転移が起きる限界を  $D_{c2}$  として、それらの値を図 2(a)(b) に示す。整数スピンの系では、 $D_{c0}$  は Haldane 相とネール相の境界になるが、 $S = 2$  では Haldane 相は無視できるほど小さい。また、 $S = 1$  では磁化がジャンプする一次転移が起きる領域が無い、つまり  $D_{c0} = D_{c1}$  なので、図 1(a) ではこれを  $D_{c1}$  と書いた。

#### 4 考察とまとめ

上記の  $m/S$ - $D$  相図から、負の  $D$  を持つ一次元量子スピン系の磁化過程は、 $D$  の絶対値が小さい順に、以下の 4 つのパターンがあり得ることがわかる (図 3 参照)。ここで、いずれの場合についても、磁化が立ち上がる臨界磁場を  $H_{c1}$ 、飽和する臨界磁場を  $H_{c2}$  とし、途中で転移がある場

合は  $H_{c3}$  とする。(a)  $D > D_{c0}$  (Haldane 相): Haldane ギャップに相当する臨界磁場  $H_{c1}$  で (1) の二次転移が起こり、Haldane 相から  $xy$ -Néel 相に変わる。(b)  $D_{c0} > D > D_{c1}$ : 磁化が 0 から有限の値にジャンプする一次転移が起こり、Néel 相から  $xy$ -Néel 相に変わる。古典系のスピフロップに相当。ただし、 $S = 1$  ではこのパターンは起こらない。(c)  $D_{c1} > D > D_{c2}$ : イジングギャップに相当する臨界磁場  $H_{c1}$  で (1) の二次転移が起こり、Néel 相から  $z$ -SDW 相に変わる。引き続いて、 $H_{c3}$  で磁化曲線には異常が現れない二次転移が起こって、 $xy$ -Néel 相へ変わる。(d)  $D < D_{c2}$ : イジングギャップに相当する臨界磁場  $H_{c1}$  で (1) の二次転移が起こり、Néel 相から  $z$ -SDW 相に変わり、そのまま飽和磁化に達する。これは、 $S = 1/2$   $XXZ$  模型の磁化過程と等価である。

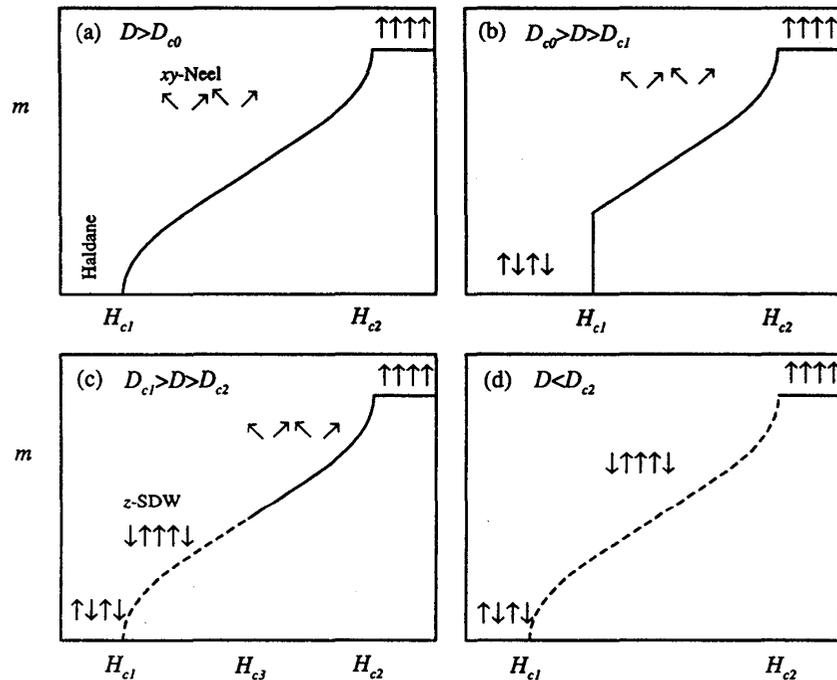


図 3: 負の  $D$  を持つ一次元反強磁性体の磁化過程.

これらの磁化過程のうち、最も量子効果が顕著に現れる興味深いものは (c) である。(最も量子化が進んでいるのは、(d) だが、これは  $S = 1/2$  と等価になってしまうので、興味の対象からはずす。) もともと古典スピン系や高次元系では、(b) のような一次転移であったものが、一次元の量子ゆらぎのために、新たに  $z$ -SDW 相が生じて二つの二次転移に変わったと見ることができるからである。

最後に、この (c) のような磁化過程が、実験で観測される可能性を考える。 $S \geq 3/2$  では、(b) のような普通の一次転移が起きる領域があるため、最も可能性が高いのは  $S = 1$  であろう。ただし、異方性のために Haldane ギャップがつぶれて、低温で Néel 秩序が生じる物質でなければならない。低温で秩序化する  $S = 1$  の反強磁性鎖の候補として、 $\text{CsNiCl}_3$  があげられる。[6] この物質のスピンフロップはすでに観測されていて、[7, 8] 磁化曲線の異常は  $H_{c1}$  に相当するものしか見つかっていないものの、これは二次転移、あるいは中間相を伴う連続転移にも見えるという説 [9] や、転移後に二種類のスピン構造が観測されたという NMR の実験の報告 [10] もある。本研究で見いだされた  $H_{c3}$  での転移は、磁化曲線には異常が出ないが、磁場に平行な incommensurate

SDW から垂直な Néel へと秩序の向きが変わるので、磁気共鳴の方向依存性や中性子散乱等で観測できると考えられる。いずれにしても、この incommensurate SDW 相が観測されれば、またひとつ、新たな巨視的量子効果が発見されることになる。ただし、この相が現れる磁場の領域は狭いので、二つの臨界磁場  $H_{c1}$  と  $H_{c3}$  は、かなり接近しているものと考えられる。最近、適当な元素置換により秩序化する Haldane 系、 $(Y_{1-x}Nd_x)_2BaNiO_5$  等 [11] も合成されており、今後の実験的研究の進展に期待する。

なお、最近の数値対角化の解析 [12] によると、結合定数にイジング的な異方性を持つ一次元量子反強磁性体 ( $XXZ$  模型) の磁化過程は、 $S \geq 1$  では一次転移を起こすことがわかった。つまり、 $S = 1/2$  の  $XXZ$  鎖だけが特殊で、あとは古典系と定性的に同じということになる。最初に述べた臨界スピン  $S_c$  は、 $XXZ$  鎖では、 $1/2$  と  $1$  の間になる。本研究で見たように、 $D$  項によって  $S \geq 1$  でも二次転移が現れたのは、大きな負の  $D$  があると  $S = 1/2$  の  $XXZ$  模型と等価になるからである。 $D$  項により、磁場中で一次転移が起きる限界という意味で臨界スピン  $S_c$  を定義するなら、 $1$  と  $3/2$  の間ということになる。

## 参考文献

- [1] L. Néel, Ann. Phys. (Paris) **5** (1936) 232.
- [2] M. Kohno and M. Takahashi, Phys. Rev. **B56** (1997) 3212.
- [3] C. N. Yang and C. P. Yang, Phys. Rev. **151** (1966) 258.
- [4] T. Sakai, Phys. Rev. B **58** (1998) 6268.
- [5] T. Sakai, preprint, cond-mat/9902281, to appear in Phys. Rev. B.
- [6] R. M. Morra, W. J. L. Buyers, R. L. Armstrong and K. Hirakawa, Phys. Rev. **B38** (1988) 543.
- [7] H. Nojiri, Y. Shimamoto, N. Miura and Y. Ajiro, J. Phys.: Condens. Matter **7** (1995) 5881.
- [8] H. A. Katori, Y. Ajiro, T. Asano and T. Goto, J. Phys. Soc. Jpn. **64** (1995) 3038.
- [9] Y. Ajiro (private communication).
- [10] Y. Inagaki, K. Tanimura, N. Granito, Y. Ajiro, M. Mekata and M. Chiba, contribution to the JPS meeting spring 1995, at Yokohama.
- [11] 横尾哲也, 物性研究, 本号参照.
- [12] T. Sakai and M. Takahashi, preprint, cond-mat/9903404.