

ジャロシンスキー-モリヤ相互作用によって誘起される量子相転移 カゴメ反強磁性体

O. セパス1、CM フォン2、PW レオン2、C. ルイリエ1

¹Laboratoire de Physique Théorique de la Matière Condensée, UMR7600 CNRS, ピエール エ マリー キュリー大学、
パリ6, 75252 パリ Cedex 05, フランス2香港科

技大学物理学部、香港クリアウォーターベイ

2008年9月2日受領、2008年10月23日発行

$S=1/2$ カゴメ反強磁性体は、
ジャロシンスキー-モリヤ結合が増加する。DDcの場合、系はモーメントフリー位相にあり、Dの場合、
Dcでは系は反強磁性長距離秩序を発達させる。量子臨界点はDcであることが分かっている。
正確な対角化と有限サイズスケールリングを用いた場合、0.1Jとなる。これは、カゴメ化合物が
ZnCu3OH6Cl3は、この固定点によって制御される量子臨界領域にある可能性があります。

DOI: [10.1103/PhysRevB.78.140405](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.78.140405)

PACS番号: 75.10.Jm, 75.40.s

スピン液体基底を実現する材料の探索
状態においては、スピン軌道相互作用に起因する小さな異方性相互作用
の存在に直面することになる。
ハイゼンベルクモデルの完全な回転対称性により、
量子ゆらぎを引き起こし、磁気を誘起する傾向がある。
低温で相が現れる。最近発見されたスピン1/2
銅酸化物ZnCu3OH6Cl3 Ref. 1は、
カゴメ格子はスピン液体の有力な候補となるかもしれない。2実
験的に、磁気流体の明らかな凍結は見られなかった。
非常に低い温度でも瞬間的に発見されている3-5
強いハイゼンベルク相互作用にもかかわらず、ハイゼンベルク
モデルの正確な対角化は、実際に非磁性の
磁気モーメントを持たない状態6,7である。しかし、スピン軌道相互作用
に起因するより小さな相互作用は確かに存在する。特に
ジャロシンスキー-モリヤ対称性8のものが期待される
磁気結合に反転中心がない場合、
ZnCu3OH6Cl3の場合。 ¹ すぐに浮かぶ疑問は
それらが非磁性相にどの程度影響するか。
ジャロシンスキー-モリヤ相互作用は、
ZnCu3OH6Cl3の文脈で、
低温でのスピン磁化率5 NMR測定による局所磁化率の測定は、異なる

欠陥の存在に関する解釈
構造10は磁化率11の直接的な適合と一致する結果であり、理論計算によ
って裏付けられている。12
異方性のより直接的な証拠は、
常磁性共鳴13 線幅を説明するには0.08J程度のジャロシンスキー-モリ
ヤ結合が必要であった13
これは銅酸化物に典型的なものである。したがって、比較的小さい
補正は、フラストレーションの大きい系では極めて重要となる可能性があ
る。実際、
古典的モデルにおける小さなジャロシンスキー-モリヤ相互作用
カゴメは、 $Q=0$ の伝播ベクトルと120°のスピンの配向を持つ長距離ネール
秩序を支持する。14スピン波
補正は磁気モーメントを正規化するが、
 $D=0.1J$ の場合は抑制しません。 ¹⁵ だから、このニールが
位相は実験的観察と調和することができた。

この速報では、適切な
量子ゆらぎの包含は相転移につながる
ネール状態からモーメントフリー位相への遷移は、量子臨界点
($Dc0.1J$ と推定)で起こる。したがって、
ZnCu3OH6Cl3の矛盾を解決し、さらに、

さらに、その磁気特性は、
量子臨界点の近さによって影響を受ける。
動的磁化率5とNMR緩和時間10,16において、特定のべき乗則のスケーリ
ングが観察され、
これまでは臨界スピン液体状態の観点から解釈されてきた
カゴメについては17,18、今回の結果は、
ZnCu3OH6Cl3のべき乗則は、
現在の固定点。
偏りのない方法でDcを見つけるために、我々は小さなクラスターの
正確な対角化を行った。D=0.1Jでは、明確な
エネルギーの低い状態の塔が出現し、それが崩壊する
1/Nのような基底状態は、対称性の破れを示す。
位相。ネール秩序パラメータをD/Jの関数として計算したところ、
D0.1Jではゼロになることがわかった。
したがって、モーメントフリー位相とDc0.1Jが実現されます。
私たちが検討しているモデルは対称性に基づいています ¹⁴
2次元カゴメ格子の図1、

$$H = \sum_{\langle ij \rangle} J_{Si} \cdot S_j + \sum_{\langle ij \rangle} D_{ij} \cdot Si S_j, \quad n=nn \quad 1$$

ここでnnは最近接点、 Si は $S=1/2$ を表す。
iサイトにおける量子スピン。各結合の中央で反転対称性が欠如している
ため、
ジャロシンスキー-モリヤ対称性は、最も近い隣接点間では許容される。モ
リヤの規則8によれば、 D_{ij} の成分は、強度面Dの方向に垂直である。

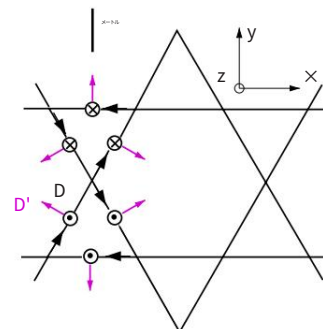


図1. オンラインカラー 許容されたカゴメ格子
ジャロシンスキー-モリヤ相互作用。結合の向き
 $Si S_j$ における演算子の順序を指定します。mlは鏡面です。

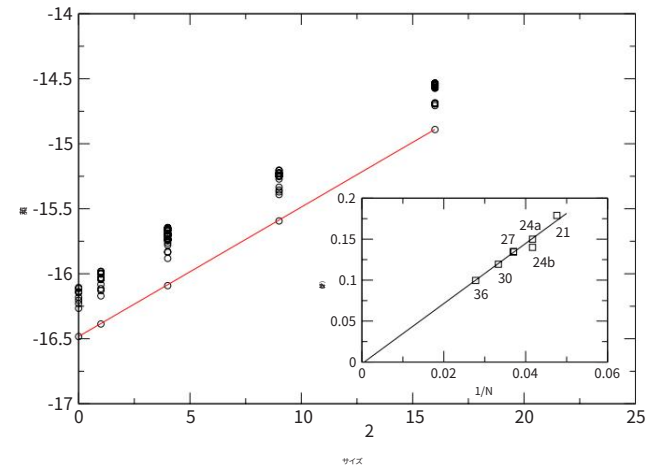


図2. ハイゼンベルクの低エネルギー準位のカラーオンライン N=36の Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用を伴うカゴメ格子。挿入図は、Szに対する最低エネルギー状態の傾きを示す。1/Nの関数として1/2INで表されます。D=0.1J。

上向きの三角形から下向きの三角形へ、そして平面内へ各三角形の中心を指す成分強度Dについては図1を参照。先験的に単純な関係はないDとDの間。Cu-OH-Cu平面が結晶構造の鏡面であった場合、Dベクトルはそれに対して垂直になります。実際、OHの陽子はその対称性が破れ、摂動が予想されるため強くなるためにはDとDを関連付けるのは難しい。ZnCu3OH6Cl3、Jは磁化率から推定される。約170~190 Kである。9,11面間結合は銅イオンはc内で遠く離れているため小さくなる方向があり、亜鉛シートで隔てられているため、以下は無視する。電子スピン共鳴測定によれば、D=15 K D0.08JおよびD 13 =2 K D0.01J。

ここで、モデル式1をより単純なモデルにマッピングします。DはDの項までU1対称性を回復する平面成分ベクトルは、は三角形の周りを回り、したがってDに還元できる。小文字のD スピンの適切な回転によって20これらの2次項は無視する。小さいからというだけでなく、同じ順序の他の対称交換異方性含めていない。したがって、回転したフレームでは、モデルはZ軸に沿った元のD成分のみを持ち、同じ強度を持ち、これに関してU1回転対称性を持つ軸：この対称性こそが、これから示すように、自発的に破られる。以下では、N=21,24,27,30,36のサイズのシステムに対する式1の数値対角化の結果、N=24-27の場合、2つの異なるクラスター形状を検討した。次元最大のヒルベルト空間の値は7108である。我々はDzyaloshinskii-Moriya結合強度はD=0.1Jに固定そしてJ=1です。熱力学的極限における対称性の破れ。各セクターにおける式1のいくつかの低エネルギーレベルを計算した異なるクラスターにおける全磁化 (Szで示される) サイズ。N =36の場合のエネルギー準位は図2に示されている。スペクトルは、観測された正確なスペクトルとは質的に異なる。

D=0で保持されています(文献7を参照)。ここでは、低エネルギーレベルは図2の赤い線から十分に離れている高エネルギー状態。いわゆる状態の塔を形成する。このエネルギーは二次項で非常によく説明される。2/2IN図2. 1/2INの傾斜は、利用可能なすべてのNに適合しています図2の挿入図に示されている。これは明らかに1/Nのような熱力学的極限ではゼロとなる。この極限ではこれらの固有状態の重ね合わせは、異なるSzを持つため、面内方向が優先される巨視的状态が形成される。したがって、この系は熱力学的回転対称性を破っていることがわかる。

限界。この観点から、国家の塔の退化は、Dによって定義される内部軸の周りの回転におけるハミルトニアン不変性の自然な帰結である。u方向を向くマクロ状態を与えられた場合、横断面は、そのすべての変換がいかなる場合も退化している。Dの周りの回転。さらに、各Szセクターの最低エネルギー状態の波数ベクトルはすべてのクラスターでQ=0なので、熱力学的極限において、この系は並進不変性を破らないと安全に結論づけることができる。さらに、連続的に対称性が破れているため、エネルギーが変化する長波長ゴールドストーンモード2次元ではkN-1/2となる。残念ながら、最初に許容されるk0波動ベクトルはこれらのクラスターは、スペクトル中の個々の長波長状態を直接観測する。実際、ゴールドストーンモードの間接的な確認は、エネルギーのスケールリングにおいて後述する。

基底状態と相関関係のスペクトルから、次のようにしてT=0における均一な磁化率を抽出できる。エネルギーの表現、Sz 2/2IN-HSz。感受性図に示すように、基底状態INはNに比例します。2であり、熱力学的極限において、D/J=0.1に対してサイトあたりの磁化率=IN/Nは=0.1440.002であることがわかります。ネール順序パラメータ。熱力学的極限における格子磁化またはネール秩序において、我々はスピンスピン相関を計算した。有限サイズの基底状態。我々は、0と0を区別する。Dに垂直な平面における配位、0Sia x x y Sjb +シニア Sjb ここで、iは単位格子、aは副格子の指数であり、D、0Siaに沿った相関 z z Sjb 0。ジャロシンスキー-モリヤ相互作用の容易平面特性から予想されるように、後者ははるかに小さく、特に大きな分離では小さいままである。面内秩序を調べるために、フーリエ級数を定義する。スピンスピン相関の変換、

サブQ = 24 / N2 ij eiQ · Ri - Rj 0Sia x x 0。 Sjb 2

これは、Q=0 でピークになる 33 行列です。Q=0における最大固有値は、単に磁気モーメントの120°面内配向単位格子。前置係数24は、最大の完全なネール状態では固有値は1である。有限のネール順序パラメータを持つ量子磁石の場合、固有値は量子ゆらぎにより、明確に定義された有限サイズのスケールリングによって1より小さい有限値に外挿される。後者は低エネルギーの存在から予測できる スピン波は波数ベクトルが2つのN-1/2のように変化する次元であり、相関についてはN-1/2の形をとり、

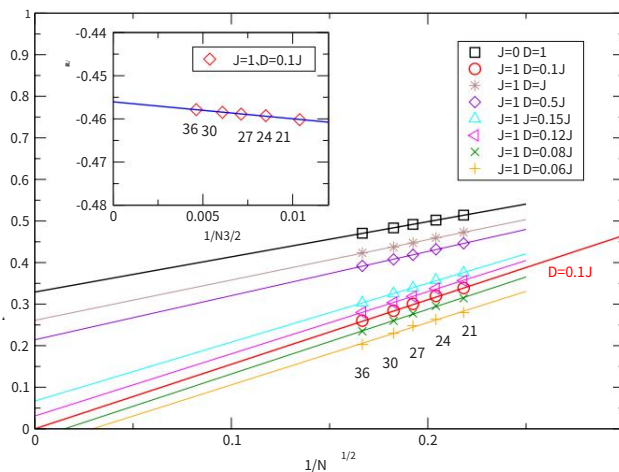


図3. 最大サイズのカラーオンライン有限サイズ外挿
SabQ=0の固有値は、 $\propto N^{-1/2}$ のスケールングを示している。 $\propto 0.326 D=1, J=0$ から
mAFからの格子モーメントの減少
ゼロD=0.1Jおよび負の値D=0.06, 0.08J。挿入図: D=0.1JにおけるN-3/2の基底状態エネルギーの有限サイズスケールング。

サイトあたりのエネルギーはN-3/2である。図3は、最大の異なるD/Jに対する固有値とN-1/2の関係。まず、
相関関係図3と
図3のサイト当たりの基底状態エネルギーの挿入図。第二に、無限大のシステムサイズの切片は、mAFと表記される順序パラメータを与える。大きなD/Jスケールから始めてD/Jを減少させると、秩序パラメータはmAF0.326からDc0.1Jの円までゼロになる。Dcの場合には有限の秩序パラメータを見つけることはもはや不可能である。負の外挿値はスケールングの崩壊を反映している。代わりに、長さスケールと短距離の相関が発達する。図4は、ネールの挙動をまとめたものである。D/Jの関数としての秩序パラメータmAF。秩序パラメータはゼロに向かって連続的に減少し、遷移は二次相転移と互換性がある。重要な値の正確な値を抽出することは困難である有限サイズスケールングによる誤差を考慮した指数。本データは平均場挙動mAFと整合している。

D-Dcですが、指数は

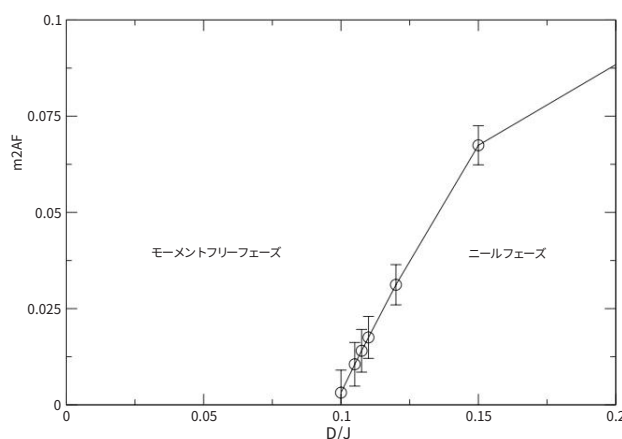


図4. D/Jの関数としてのネール秩序パラメータ
外挿から無限の大きさまで。このシステムには磁気は存在しない。
DDc0.1Jのモーメントを持ち、DDcのネール順序を持ちます。

いずれにせよ、Dc0.1Jが明らかに臨界値として現れている。
ネール位相Q=0を分離する点、スピンの面内配向120°
静的モーメントのない位相から。それは
スピン波の推定値よりも正確な推定値である。
3分の1小さい
なぜなら、ここではすべての量子ゆらぎが考慮されました。

相図におけるネール相の発生について簡単に理解するために、

大きなD/Jの限界については、単純な物理的議論で使用するために、我々は三量体化した

カゴメ格子。23三角形上には3つのハイゼンベルク量子
スピン1/2は四重項と2つの縮退した低エネルギー二重項を形成する。ジャロシンスキー-モリヤ相互作用により縮退は解除され、ベクトルカイラリティがDと反対の二重項が選択される。ここでDは大きいと仮定し、

高次の二重項と四重項。擬スピンiを定義する。

$\propto 1/2$ となる。三角形間のジャロシンスキー-モリヤ相互作用は、現在大きいと仮定されているが、擬ドスピンに対しては以下のように書ける有効な相互作用を与える。

$$H = - \frac{2}{9} D \sum_{\langle i,j \rangle} \left(\frac{1}{3} \mathbf{x}_i \cdot \mathbf{x}_j + \frac{1}{3} \mathbf{y}_i \cdot \mathbf{y}_j + e_{ij} \cdot \mathbf{z}_i \right) \quad (3)$$

ここで、 i, j は三角格子上の位置である。 \mathbf{e}_{ij} は単位反時計回りに回転すると+Z方向のベクトルが上向きになる三角格子の三角形。式3は本質的に

かなり大きな有効強度を持つ強磁性面内相互作用
ジャロシンスキー-モリヤ相互作用。後者は磁気
フラストレーションと式3を解く問題は原理的には元の問題と同じくらい複雑です。3つの三角形の場合、式3の基底状態はQ=0の二重項状態である。
 $\uparrow \uparrow \downarrow + \uparrow \downarrow \uparrow + \downarrow \uparrow \uparrow$ からなる擬スピンとその時間反転の対応物。同様に、古典的基盤

式3の状態はQ=0の面内強磁性状態であり、

例えば、 $\mathbf{x}_i = 1/2$ はすべての三角形で成り立ちます。元のスピンの関係に言え、ば、これはQのシアにおける長距離ネール秩序に対応する。

$\propto 0$ および120°形状。面内モーメントの減少は推定することもできる。上記の3つの三角形の強磁性二重プレットの
場合、2つの三角形の重ね合わせを形成することができる。

例えばx軸方向のモーメントを与える状態。モーメント
すると、mAF=4/90.44が全質量の4/90.44となることが分かる。

モーメント。これはQ=0のネール

厳密な対角化によって大きな極限で発見された位相

D/J。これまでの研究から、D=0

相は非磁性であるため、6,7少なくとも1つの

2つの相の間の量子臨界点。

S=1/2カゴメ反強磁性体は

Dc0.1Jの量子臨界点は、モーメントフリー位相DDcと、サブ格子モーメントDDcまたはD0の場合は弱いネットモーメントを持つネール位相を分離します。参考文献22を参照してください。

これは明らかにZnCu3OH6Cl3文献3-5に静的モーメントが存在しないことに一致している。なぜなら、カップリング

ESRから抽出、D=0.08J、 $\propto 1/3$ 臨界値よりも小さい

さらにこの推定によれば、この化合物は量子臨界点に非常に近い位置にある。これにより、

観測されたべき乗則挙動の起源の問題

実験的には温度が下がると5,10,16

これまでは、臨界スピンの観点から解釈されてきた。

液体17,18または自由S=1/2不純物25。ここでは近接性の観点から異なる本質的解釈現在の臨界点と。臨界点の予測は拳動と低温スケールリングは簡単な作業ではありません。しかし、Dに関する現在の不確実性を考慮すると、=0相と価電子結合結晶の他の可能性状態26またはスピンネマティック状態などの中間相、例えば、実効低エネルギー量子場理論が何であるかを確かめるのは実に困難である。ただし、同じ秩序相が代数的スピンを記述する場の理論の不安定性液体27ですが、ここではDcに有限の臨界値を与えています。有限温度では、このような臨界点は量子を開く。

ZnCu3OH6Cl3の磁気特性に影響を与える可能性のある臨界領域である。もちろん、特に興味深いのは、化合物が外部圧力または磁場を加えることによって遷移する。例えば。

F. パート、P. メンデルス、A. ゴルコに感謝いたします。未発表の実験データを共有していただいたB氏。議論をしてくださったCanals、C. Lacroix、A. Laeuchli、F. Milaに感謝します。OCはILLとInstitut Néelに感謝の意を表します。CMFとPWLは、香港RGC助成金番号601207。

1M. P. Shores,EA Nytko,BM Bartlett,およびDG Nocera,J. Am. Chem. Soc. 127, 13462 2005年。
2B. Levi, Phys. Today 60, 16 2007。
3P.メンデルス、F. パート,MA デ フリース、A. オラリウ、A. ハリソン、F. Duc,JC Trombe,JS Lord,A. Amato,および C. Baines,物理学。 Rev. Lett. 98, 077204 2007。
4O.オファアー、A. ケレン,EA Nytko,MP ショアーズ,BM パートレット,D. G. ノセラ,C. ベインズ、A. アマト,arXiv:cond-mat/0610540 未発表。
5 JS ヘルトン,K. マタン,MP ショアーズ,EA Nytko,BM パートレット、吉田 泰、高野 裕、A. サスロフ、邱 裕、J.-H.チョン,DG NoceraおよびYS Lee、「Phys. Rev. Lett. 98, 107204 2007」。
6P. W. LeungとV. Elser, Phys. Rev. B 47, 5459 1993。
7P. Lecheminant,B. Bernu,C. Lhuillier,L. Pierre,および P. Sind-zingre, Phys. Rev. B 56,2521 1997; C. ウォルトマン,H.-U. Everts,B. Bernu,C. Lhuillier,P. Sindzingre,P. Lecheminant, およびL. Pierre, Eur. Phys. J. B 2, 501 1998。
8 I. Dzyaloshinskii, J. Phys. Chem. Solids 4, 241 1958; T. 守屋,物理。改訂120.91,1960年。
9M. RigolおよびRRP Singh, Phys. Rev. Lett. 98, 207204 2007; 物理学改訂B76,184403 2007年。
10A.オラリウ,P. メンデルス、F. パート、F. デュック、JC トロンブ、MA デ VriesおよびA. Harrison、「Phys. Rev. Lett. 100, 087202 2008」。
11G. Misguich と P. Sindzingre,Eur.物理学。 J.B 59,305,2007。
12M. J. RozenbergとR. Chitra,arXiv:0805.3483 未発表。
13A.ソルコ,S. ネルトラ,J. ヴァン トール、LC ブルネル、F. パート、F. デュク、J. C. Trombe,MA de Vries,A. Harrison,および P. Mendels,Phys. Rev. Lett. 101,026405 2008年。
14M. Elhadj,B. Canals,C. Lacroix,Phys. Rev. B 66,014422 2002年。
15M. Elhadj,博士論文、ジョセフ・フーリエ大学,2002年 ;R. Ballou,B. Canals,M. Elhadj,C. Lacroix,および AS Wills,J. Magn. Magn. Mater. 262, 465 2003年。

16T. 今井,EA ニトコ,BM パートレット,MP ショアーズ,DG Nocera, Phys. Rev. Lett. 100, 077203 2008。
17Y. Ran,M. Hermele,P.A. Lee,およびX.-G. Wen、「Phys. Rev. Lett.」 98,117205 2007年。
18S. Ryu,OI Motrunich,J. Alicea,およびMPA Fisher,Phys. Rev. B 75,184406 2007年。
19Y. F. Cheng,O. Cépas,PW Leung,T. Ziman,Phys. Rev. B 75,144422 2007年。
20L. Shekhtman,O. Entin-Wohlman,A. Aharony、「Phys. Rev.」 Lett. 69, 836 1992年。
21H. NeubergerとT. Ziman, Phys. Rev. B 39, 2608 1989; DS フィッシャー、同上39,11783 1989。
22D0のときは、演算子を元のフレーム :120°秩序は弱い強磁性体ネットに変換される。実際、弱い強磁性体ネットと弱い強磁性体ネットの間の古典的エネルギー差は強磁性体であり、共面120°状態はD 2のオーダーのみである。そして、実際に秩序の形を予測するためには、2次の交換異方性を考慮する必要がある（文献20）。
23V.スプラマニヤム,物理学。 Rev. B 52,1133 1995; F. ミラ,物理学。 Rev. Lett. 81, 2356 1998。
24また、零温度帯磁率の推定値はD = Dcでは、 = 0.144はNMRで測定された固有磁化率 = 0.13（文献10）に近い。
25R. ChitraとMJ Rozenberg,Phys. Rev. B 77,052407 2008。
26 JB Marston および C. Zeng, J. Appl. Phys. 69, 5962 1991; C. Zeng および V. Elser,Phys. Rev. B 51,8318 1995; AV シルオミヤトニコフとSV マレーエフ、同書。 66,132408 2002; R. Budnik と A. Auerbach, Phys. Rev. Lett. 93, 187205 2004; P. ニコリックとT. センティル,物理改訂B68,214415 2003 ; RRP SinghとDA Huse,同上、 76,180407R 2007。
27M. Hermele,Y. Ran,P.A. Lee,およびX.-G. Wen,Phys. Rev. B 77, 224413 2008年。