

「スピナノチューブの新しいカイラリティ誘起超伝導の理論的・計算科学的研究」

兵庫県立大学物質理学研究科

坂井 徹

## 1 研究の背景と目的

近年、スピナノチューブと呼ばれる物質が合成され、磁性・光応答・超伝導などの多機能を持つナノチューブとして将来の応用を期待されている。主にヨーロッパと日本で合成されたことから、フランスと日本の理論グループにより先駆的な研究が行われ、スピンとカイラリティの自由度における励起スペクトルにギャップがあることが理論的に示された。銅酸化物高温超電導体との類推から、スピン励起のギャップを駆動力とする超伝導が起きることはすぐに予測されたが、本申請者によるこれまでの計算科学的な研究により、カイラリティ励起のギャップを起源とする新しいメカニズムの超伝導の可能性が提唱された。そこで本研究では、京コンピュータなどのスーパーコンピュータによる大規模シミュレーションにより、スピナノチューブにおける新しいカイラリティ誘起超伝導について、どのような条件下で起きるか、どのような性質を持つかについて理論的・計算科学的に解明することを目標とした。

本研究においては、新しい超伝導メカニズムにおいて鍵となるスピングャップ、すなわち磁気励起のエネルギーギャップに着目し、これがどのような条件下で生じるかを研究した。スピナノチューブの候補物質として知られている $[(\text{CuCl}_2\text{tachH})_3\text{Cl}]\text{Cl}_2$ という化合物では、残念ながらスピングャップが観測されていない。そこで、この化合物の結晶構造を想定して、どのような条件を変えるとスピングャップが生じるのかを検討する。スピングャップは強い量子効果によって生じるが、量子効果はその系の対称性に起因することから、対称性を変える磁気異方性を導入した理論モデルを提唱し、どのような場合にスピングャップが生じ、どのような場合に消失するのかを明らかにすることを目的とした。とくに本研究においては、磁場によって誘起されるスピングャップ、すなわち磁化プラトーと呼ばれる現象に注目して、磁化プラトーがどのような場合に生じるかを解析した。

## 2 研究方法・研究内容

新しい超伝導メカニズムにおいて重要な鍵となる磁気励起のエネルギーギャップ、すなわちスピングャップに着目し、これがどのような条件下で生じるのかを、数値的厳密外角化と呼ばれる数値シミュレーション法により理論的に研究した。具体的には、スピナノチューブの候補物質として知られる化合物 $[(\text{CuCl}_2\text{tachH})_3\text{Cl}]\text{Cl}_2$ の結晶構造(図1)を想定して、これに対称性を変える磁気異方性を導入したハイゼンベルグモデルと呼ばれる理論モデルを仮定し、数値的厳密対角化を適用した。

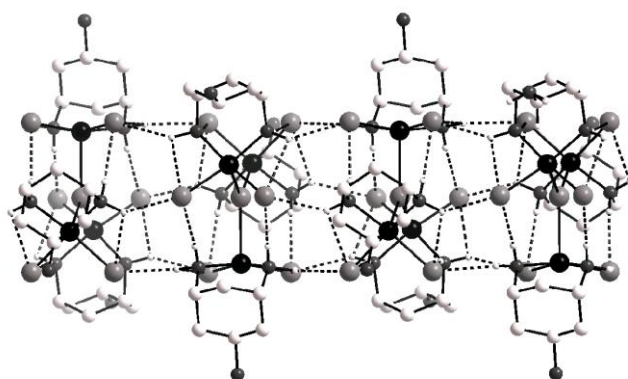


図1. 化合物[(CuCl<sub>2</sub>tachH)<sub>3</sub>Cl]Cl<sub>2</sub> の結晶構造

仮定した理論模型は以下のハミルトニアンと呼ばれるエネルギー演算子で記述される。

$$H = J_1 \sum_{i=1}^3 \sum_{j=1}^L (S_{i,j}^x S_{i,j+1}^x + S_{i,j}^y S_{i,j+1}^y + \lambda S_{i,j}^z S_{i,j+1}^z) + J_2 \sum_{i=1}^3 \sum_{j=1}^L \{ (S_{i,j}^x S_{i+1,j}^x + S_{i,j}^y S_{i+1,j}^y + \lambda S_{i,j}^z S_{i+1,j}^z) + (S_{i,j}^x S_{i+1,j+1}^x + S_{i,j}^y S_{i+1,j+1}^y + \lambda S_{i,j}^z S_{i+1,j+1}^z) \} \quad (1)$$

各  $S$  は大きさ  $S=1/2$  の量子スピン演算子で、 $J_1$  及び  $J_2$  は交換相互作用と呼ばれるスピン間の相互作用の結合定数で、図2で表される銅原子のスピン間の相互作用である。また、 $\lambda$  が磁気異方性パラメータである。

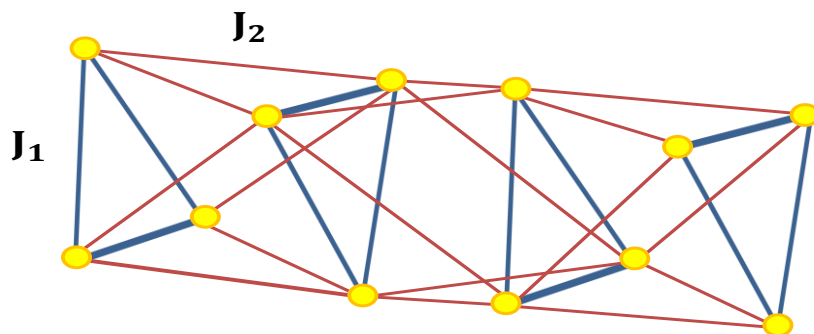


図2. 交換相互作用  $J_1$  と  $J_2$  の位置。黄丸が銅原子の位置を表し、それぞれ大きさ  $S=1/2$  のスピンをもつ。

この理論模型にランチョス法に基づく数値的厳密対角化を適用し、有限サイズ(長さ  $L=4\sim 8$ )のクラスターの磁場誘起スピンギャップ、すなわち磁化プラトーを計算し、現象論的繰り込みと呼ばれる理論手法を用いて、無限系で磁化プラトーが生じるかどうかを解析する。現象論的繰り込みとは、磁化プラトーが生じる相と生じない相の相境界において、有限クラスターの磁化プラトーが  $1/L$  に比例することを利用して、相境界を理論的に推定する方法である。

## 3 研究成果

本研究では、式(1)の理論模型で表される長さ $L$ のスピンナノチューブに数値的厳密対角化を適用して、磁場誘起スピンギャップである磁化プラトーを計算し、現象論的繰り込みと呼ばれる手法を用いて、無限系で磁化プラトーが生じる相と消える相の相境界を求めた。パラメータとしては、 $J_1 = 1$ に固定し、 $J_2$ と異方性パラメータ $\lambda$ を変化させたときの磁化プラトー相とプラトーのない相の相境界を求め、相図を得た。結果は図3である。

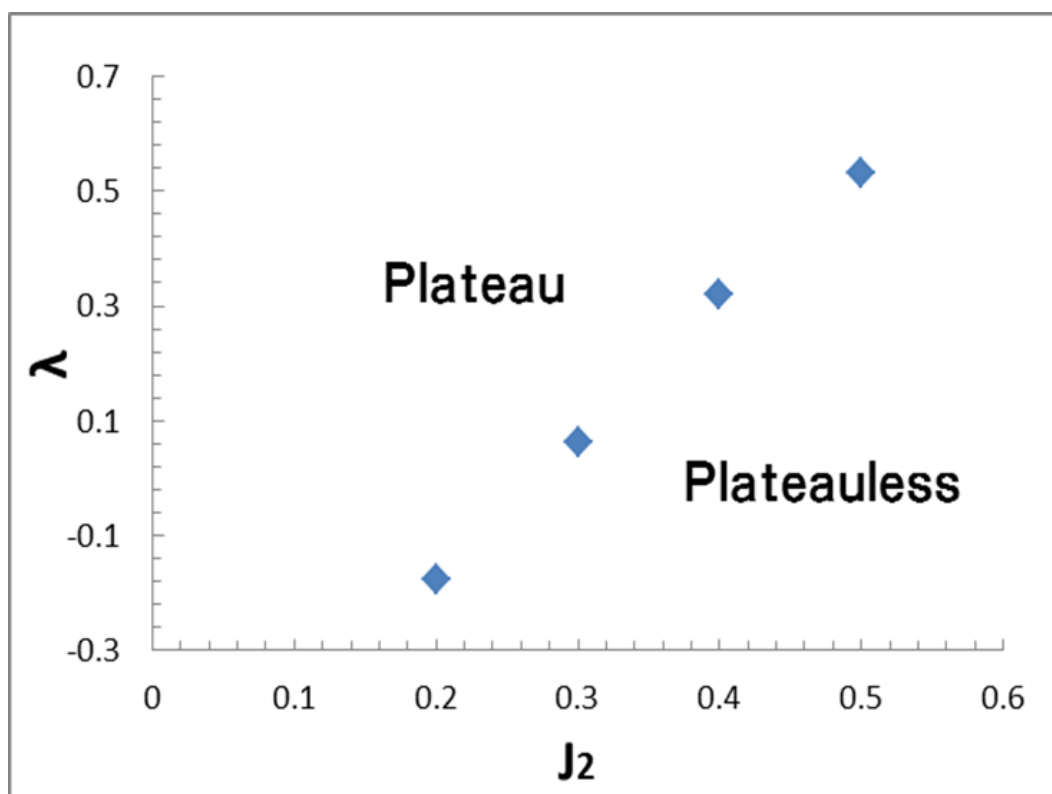


図3. 数値的厳密対角化と現象論的繰り込みによる磁化プラトーの相図。

この相図から、できるだけ等方的( $\lambda = 1$ )に近い場合、またできるだけ $J_2$ が小さい場合に磁化プラトーが生じやすいことがわかった。

本研究の成果により、スピンナノチューブで新しいメカニズムの超伝導を引き起こすためには、できるだけスピン間の交換相互作用が等方的に近くて、三角形のユニットセル上での相互作用が鎖方向の相互作用より大きい物質を合成することが必要であるという結論を得た。これは、今後の新物質合成の重要な指針となるであろう。

本研究の成果は、国際会議 International Conference on Molecule-Based Magnets (仙台)で発表、国際会議 Energy Materials Nanotechnology Meeting (メルボルン)で招待講演し、学術雑誌 POLYHEDRON に投稿中である。このほか、関連する低次元系についての研究成果を Journal of the Physical Society of Japan 誌や Journal of Physics: Conference Series 誌に出版した[1-3]。

## 文献

- [1]K. Okamoto, T. Tonegawa and T. Sakai: J. Phys. Soc. Jpn. (Letters) 85 (2016) 063704-1-4.

[2] K. Okamoto, T. Tonegawa and T. Sakai, J. Phys.: Conf. Ser. 683 (2016) 012038-1-6.

[3] T. Sakai and H. Nakano: POLYHEDRON 126 (2017) 42-44.

#### 4 生活や産業への貢献および波及効果

約 30 年前に銅酸化物高温超伝導体が発見されて以来、常温超伝導実現を目指して、転移温度の高い超伝導体の合成が盛んに行われている。常温超伝導が実現すれば、ロスのないエネルギー輸送が可能となり、大きなエネルギー革命につながるからである。本研究の成果は、より転移温度の高い超伝導体の物質設計の指針を与えるという意味で、このような常温超伝導を目指す研究の進歩に貢献できると思われる。また、新しい超伝導メカニズムの提唱に結びつけば、100 年以上続く超伝導の基礎研究におけるブレークスルーを起こす可能性も秘めている。