

学位論文

マグノンペアによる熱ホール効果についての理論研究  
(Theory of paired-magnon thermal Hall effect)

平成 28 年 12 月 博士 (理学) 申請

東京大学大学院 理学系研究科  
物理学専攻  
高田 えみか



# Abstract

整数量子ホール効果の発見とそれを解釈する為の Thouless-Kohmoto-Nightingale-den Nijs (TKNN) 公式が構築されて以来、固体結晶においてエネルギーバンド描像でよく記述される弱相関電子系の（特に波数空間における）トポロジカルな性質が注目を集め、電子物性研究においてトポロジーの考え方の有用性が広く認識されるようになった。TKNN 公式は、2次元電子系において波動関数から定義されるベリー曲率（波数空間の磁場と解釈できる）の分布に特異点がある場合にホール効果が生じることを教えてくれる。量子ホール効果は強磁場中のクリーンな2次元電子系という極めて特殊な状況で起こる現象であるが、2005年前後から2次元量子スピンホール絶縁体、グラフェン、3次元トポロジカル絶縁体、ワイル半金属などの新しい物質が次々と発見・合成され、これらの多様な電子系で波数空間におけるベリー曲率に関わる物理現象が発生し得ることが認識されるようになった。これ以降、固体電子物性分野においてトポロジーに関連する研究は猛烈な勢いで進展している。

電子系で成功した波数空間におけるトポロジーの考え方は、電子系以外の量子多体系へも普及・拡散をはじめている。固体電子系の電荷以外の自由度が物性を支配する典型的な系として磁性絶縁体におけるマグノン（スピン波）の系を挙げることができる。マグノン系におけるトポロジーに基づいた研究はここ5年ほどの間に急速に進展している。特に、マグノン系のホール効果はその代表例と言える。2009年 Fujimoto は電子系の電場と同様に、磁性体に磁場勾配を加えると、電荷をもたないスピン波（マグノン）がある条件（特定のモデル）の下でホール効果を示すことを明らかにした。その直後の2010年に、Katsuraらは磁場勾配ではなくより現実的な温度勾配を適当な磁性体に印加することでマグノンの熱ホール効果が実現することを理論的に予言し、その後の Onose らの実験研究によりパイロクロア強磁性体においてマグノン熱ホール伝導度が検出された。さらにその後の Matsumoto らの理論研究により、熱ホール効果の理論が整備されている。現在では、マグノンのホール効果を起こす一つの現実的ルートは（すなわち、マグノンの波動関数にベリー曲率をもたらすルートは）、十分な大きさのジャロシンスキー・守谷 (DM) 相互作用によって与えられることが認識されている。これは DM 相互作用が、マグノンに疑似的な磁束と同等な効果を持つ複素数のホッピングを与え、その結果マグノンの波動関数に有限のベリー曲率が生じるためである。電子系のトポロジカル絶縁体において、スピン軌道相互作用が電子の波動関数にベリー曲率を与えるのと同じように、スピン軌道相互作用に由来する DM 相互作用がマグノンの波動関数に非自明なトポロジーを付け加えるという訳である。

さて、多くの電子系では、電子そのものが長寿命の準粒子であり、低エネルギー物性を支配している。しかしながら、磁性絶縁体ではマグノンの他にも長寿命の準粒子がしばしば登場する。特に、低次元量子磁性体やフラストレート磁性体では、そのような粒子が出現することが多い。1次元ギャップレス量子ス

ピン液体におけるスピノン、1次元ギャップフル量子スピ液体のソリトンやブリーザ（ソリトンと反ソリトンの束縛状態）、2次元量子スピ液体のスピノンやマヨラナフェルミオン、フラストレート磁性体における複数マグノンの束縛状態（マグノンの分子）などが代表的な例である。このことから、マグノンだけでなく、これらの多様な磁氣的準粒子たちの波動関数のトポロジーに関わる物理現象が磁性絶縁体では期待される。

このような状況を踏まえて、本研究では、フラストレート強磁性体の強磁場下飽和磁化状態ではしばしば発現するマグノンペア（分子）による熱ホール効果の可能性を理論的に考察した。これまでの理論・実験研究により、マグノンペアが現れるフラストレート磁性体として幾つかの系が知られているが、本研究では、双2次スピ相互作用を有するパイロクロア反強磁性体の強磁場領域と、 $S = 1/2$  フラストレート zigzag スピン鎖が弱く結合した2次元磁性体の強磁場領域の2つの系を採り上げる。この2つのモデルはそれぞれ、クロムスピネル酸化物磁性体、 $\text{LiCuVO}_4$  や  $\text{LiCu}_2\text{O}_2$  などの擬1次元銅酸化物磁性体の有効モデルであると考えられている。パイロクロア反強磁性体では、双2次相互作用がマグノンペアの束縛エネルギーを与え、単一マグノンに加えて、マグノンペア励起が飽和磁化相において現れる。 $S = 1/2$  の zigzag スピン鎖では、2つの競合する交換相互作用 ( $J_1$  と  $J_2$ ) により、マグノンに加えてマグノンペアが現れることが知られている。外部磁場を減少させ、マグノンペアがボーズアインシュタイン凝縮すると、スピネマティック秩序という新しい磁気秩序相が現れることが予言されており、これらの系はスピネマティック相の候補としても精力的に研究されている磁性体である。我々は、この2つの系の強磁場領域においてマグノンとマグノンペアが混在する状況での熱ホール伝導度を理論的に解析した。その結果、マグノンの熱ホール効果と同様に、マグノンペアの熱ホール伝導度を有意にする上でも DM 相互作用が有効であることを明らかにした。また、外部磁場周りのスピンの回転対称性を破るような DM 相互作用は一般にマグノンとマグノンペアの混成をもたらす、この混成の結果、マグノンとマグノンペアの混成状態が非自明な形で熱ホール伝導度に寄与することも明らかにした。本論文では、適当なパラメータ領域において、全体の熱ホール伝導度の中でマグノンペアの寄与が有意になり得ることを定量的に示す。これらの結果は、新しい準粒子であるマグノンペアが実際の磁性体の熱ホール効果を通じて観測され得ることを示唆するものである。

最近著しい発展を続けているスピントロニクスの視点に立つと、マグノンはスピンを伝搬する重要な粒子であることが知られている。この観点からは、マグノンの熱ホール効果はスピンを伝搬する新しい方法を提供している、と言える。したがって、我々の予言するマグノンペアの熱ホール効果は、スピントロニクスに新しいスピントロニック輸送方法を提供している、と言うこともできる。すなわち、我々の成果は、理学的な視点からだけでなく、工学的（スピントロニクス）な視点からも新しい輸送現象の研究に貢献することが期待できる。

第3章の内容の一部（パイロクロア反強磁性体の磁場中相図）は以下の修士論文

- 高田えみか、東京大学大学院理学系研究科、2013年度修士論文「双二次相互作用をもつパイロクロア反強磁性体における強磁場下量子状態の理論的研究」

に基づくものであり、またこれを拡充したものを以下で発表予定である。

- E. Takata, T. Momoi, and M. Oshikawa, “*Nematic ordering in pyrochlore antiferromagnets: high-field phase of chromium spinel oxides*”, arXiv:1510.02373.

第 3 章と第 4 章の本論文の主要な内容である熱ホール効果に関する研究は以下で発表予定である。

- E. Takata and M. Sato, “*Theory of single- and paired-magnon thermal Hall effect on frustrated magnets*”, in preparation.



# Abstract

The discovery of the integer quantum Hall effect and the Thouless-Kohmoto-Nightingale-den Nijs (TKNN) formula led to the concept of topological nature of electron systems. The TKNN formula gives the Hall conductivity in terms of the Berry curvature, which can be interpreted as a magnetic field in the momentum space. The quantum Hall effect occurs under the specific condition, i.e. two-dimensional electron system under a strong magnetic field. On the other hand, inspired by the developments on quantum Hall effect, a much wider variety of physical phenomena, which are related to the Berry curvature in the momentum space but do not necessarily require a strong magnetic field, have been also recognized. The relevant systems include 2D quantum spin Hall insulators, graphene, 3D topological insulators, and Weyl semimetals. Thus, our understanding of electronic properties based on topology has been developed drastically.

These developments on electron systems have been also expanded to other problems in solid state physics. The magnon (spin wave) appearing in magnetic insulators is an typical example of elementary excitations which do not carry electric charge. The study of magnons associated with topology has been developed rapidly in the recent years. In particular, the Hall effect of magnons is a representative example. Fujimoto showed that spin wave (magnon) with no charge degrees of freedom causes the Hall effect, where a transverse spin current is induced by gradient in magnetic field, in 2009. Katsura *et al.* predicted a magnon thermal Hall effect for some magnets under a temperature gradient in 2010. Application of the temperature gradient is more realistic within current experimental techniques than application of the magnetic-field gradient. In fact, following the theoretical prediction, Onose *et al.* succeeded in detecting magnon thermal Hall effect in a pyrochlore ferromagnet  $\text{Lu}_2\text{V}_2\text{O}_7$  experimentally. Matsumoto *et al.* improved the theory of the magnon thermal Hall effect based on the linear response theory with temperature gradient. The Dzyaloshinsky-Moriya (DM) interaction, which arises from the spin-orbit interaction, brings about a complex hopping of magnon, which gives rise to the Berry curvature of magnon wave-function, in analogy with electron systems such as topological insulators where the spin-orbit interaction gives rise to the nontrivial topology of the electron wave-function.

Although the magnon thermal Hall effect is attractive theoretically and experimentally, there are quasi-particles with long life-time other than magnons in magnetic insulators. In particular, such particles often appear in low-dimensional quantum magnets and frustrated magnets. Examples include spinons in 1D gapless quantum spin liquids, solitons and breathers (bound states of solitons) in 1D gapful quantum spin liquids, spinon and majorana fermion in 2D quantum spin liquids, multi-magnon bound states (magnon molecule)

in frustrated magnets, and so on. Thus, we also expect physical phenomena associated with topology of wave-function of these magnetic quasi-particles in magnetic insulators.

In this thesis, we theoretically discuss the possibility of the thermal Hall effect induced by paired-magnons. Earlier studies suggested that paired magnons appear in the saturated magnetization state of some frustrated magnets under a high magnetic field. In our study, we focus on the following two systems: pyrochlore antiferromagnets with biquadratic exchange interaction, and two-dimensional magnets where the  $S = 1/2$  frustrated zigzag spin chains are weakly coupled. In the pyrochlore antiferromagnets, the biquadratic interaction gives the bound energy between magnons. In  $S = 1/2$  zigzag chain, competing exchange interactions,  $J_1$  and  $J_2$ , give rise to pairing of magnons. In both cases, in addition to the single magnons, paired magnons appear as elementary excitations in the saturated magnetization phase. It is predicted that a new magnetic ordered phase, spin nematic phase, appears when paired-magnons condense below a critical value of the applied magnetic field. The two systems mentioned above are candidates to realize a spin nematic phase and have been studied actively. In contrast, in this paper we study the thermal Hall effect in the saturated magnetization phase above the critical value of the magnetic field where neither magnons nor paired-magnons condense. However, the proximity to the possible spin-nematic phase implies the existence of paired-magnons as low-energy excitations. Thus we can expect a significant contribution from the paired-magnons to the thermal Hall effect. We analyze theoretically the thermal Hall conductivity for these two systems under the condition of existence of both magnon and paired-magnon in the region of high magnetic field, based on the formulation developed for unpaired magnons by Matsumoto *et al.*. As a result, we have found that the DM interaction plays an important role in providing the finite thermal Hall conductivity of paired-magnon as well as that of the unpaired magnons. The DM interaction breaks spin-rotational symmetry around external field and generally gives rise to hybridization between a single magnon and a paired-magnon. We have found that hybridized state contributes to the thermal Hall conductivity in a nontrivial manner. We demonstrate quantitatively that there is a significant contribution of paired-magnons in the total thermal Hall conductivity in some parameter region. Those results indicate that new type of quasi-particle, paired-magnon, can be observed in real magnets through the thermal Hall effect.

While the paired magnons in frustrated magnets have been discussed in the context of the possible spin-nematic phase, their direct observation has been lacking so far. Thus, our prediction of the thermal Hall effect due to the paired magnons, if observed, will greatly contribute to the further understanding of frustrated magnetism. It is known that magnon is an important quasi-particle carrying spin current in terms of spintronics, which has been developed dramatically. The magnon thermal Hall effect is expected to be utilized to induce a spin current for spintronics applications. Therefore, the thermal Hall effect due to paired magnons, which is predicted in this Thesis, will be also of interest in terms of engineering in the future.

A part of the content of Chapter 3 is based on the following master thesis,

- E. Takata, “*Theory of quantum states under high magnetic field in pyrochlore antiferromagnets with biquadratic interactions*”, 2013, Master thesis, the university of Tokyo.

The developed contents of the master thesis will be published in the following paper,

- E. Takata, T. Momoi, and M. Oshikawa, “*Nematic ordering in pyrochlore antiferromagnets: high-field phase of chromium spinel oxides*”, arXiv:1510.02373.

The main contents of Chapter 3 and Chapter 4 will be published in the following paper,

- E. Takata and M. Sato, “*Theory of single- and paired-magnon thermal Hall effect on frustrated magnets*”, in preparation.



# 目次

Abstract	i
Abstract	v
第 1 章 序論	1
1.1 研究背景と本研究の目的	1
1.2 論文の構成	4
第 2 章 フェルミオン系とボソン系におけるホール効果	7
2.1 整数量子ホール効果 (チャーン絶縁体)	7
2.2 マグノン熱ホール効果の定式化	9
2.3 フェルミオン系とボソン系のホール効果の類似点と相違点	12
2.4 ベリー曲率の数値的な見積もり方法	12
2.5 有限のマグノン熱ホール伝導度を得る条件	13
第 3 章 マグノンとマグノンペアの分散関係	17
3.1 双 2 次相互作用を持つパイロクロア反強磁性体	17
3.2 弱く結合した $S = 1/2$ フラストレート zigzag スピン鎖	29
第 4 章 ベリー曲率と熱ホール伝導度	39
4.1 双 2 次相互作用を持つパイロクロア反強磁性体	39
4.2 弱く結合した $S = 1/2$ フラストレート zigzag スピン鎖	50
第 5 章 まとめと結論	55
付録 A ベリー曲率	59
付録 B 熱流の定義	63
付録 C 双 2 次相互作用を持つパイロクロア反強磁性体のマグノンのハミルニアン行列表示	65
付録 D 双 2 次相互作用を持つパイロクロア反強磁性体のマグノンペアのハミルニアン行列表示	69

---

付録 E	双 2 次相互作用を持つパイロクロア反強磁性体の DM 相互作用による混成項	75
付録 F	弱く結合した $S = 1/2$ フラストレート zigzag スピン鎖のハミルニアン行列表示	77
謝辞		81
参考文献		83

# 第 1 章

## 序論

### 1.1 研究背景と本研究の目的

本研究の主題は、磁性体における熱ホール効果である。それ故まずこの序論では、ホール効果に関わる研究背景と本研究の意義及び動機付けについて解説する。その後、本論文の構成について説明する。

ホール効果の歴史は古く、1879年に Edwin Herbert Hall が「電流が流れている金属に、電流に対して垂直に磁場を印加すると、電流と磁場に垂直な方向に起電力が現れる」ことを発見したことに始まる [1]。この古典的なホール効果は電子が磁場によりローレンツ力を受けることで生じている、と古典力学の範囲で解釈することができる。その約 100 年後、von Klitzing らによって古典力学では全く説明が出来ない量子ホール効果が発見された [2]。彼らは半導体シリコンを用いて生成した 2 次元電子系に強磁場を印加すると、極低温でホール伝導度がとびとびの値を持つことを見つけた。この現象は 1975 年に Ando らによって理論的に指摘されていたが、その後 Laughlin や Thouless らが 2 次元結晶電子系におけるホール伝導度量子化の理論を構成することに成功した [3–6]。Laughlin はベクトルポテンシャルと波動関数の量子力学的位相の関係から、現象論的にホール伝導度の量子化を示した。Thouless らは久保公式を用いて実際にホール伝導度を計算し、量子ホール効果の発現には波数空間における電子の波動関数から定義されるベリー曲率に非自明なトポロジー（幾何学的な特異性）が不可欠であることを明らかにした [5]。この Thouless, Kohmoto, Nightingale, den Nijs が示した「絶対零度の 2 次元電子系において、あるエネルギーバンドまで電子が占有しているとき、ホール伝導度が  $e^2/h$  の整数倍になる」という結果は、現在 TKNN 公式と呼ばれており、ホール伝導度の整数値部分はチャーン数と呼ばれるトポロジカル数で表現される。現在では、ホール伝導度が量子化することと、系の表面・境界に安定なギャップレスのエッジ流が存在することの 2 者が対応していることが広く認識されている（バルク・エッジ対応）。

一方、21 世紀を迎える前後から、エレクトロニクスの技術に電子スピンの自由度も巧く取り込んでより高精度高効率の情報処理を目指すスピントロニクス研究が急速に進展し始めた [7, 8]。このスピントロニクスの隆盛とも関連し、トポロジーに基づいた固体物理研究において、スピン流（電子のスピン角運動量の流れ）のホール効果であるスピンホール効果の精力的な研究が実施されるようになった [9, 10]。また、外部磁場ではなく電子スピンの強磁性秩序（内部磁場）や 3 次元的なスピントクスチャによって発現する異常ホール効果のベリー曲率に基づく理論も発展した [11, 12]。そのような中で 2005 年に Kane と Mele によって量子スピンホール効果を示す模型が提案された [13]。量子スピンホール効果とは、（量子ホール

効果が強磁場中で時間反転対称性が破れた系において発現する現象であったこととは対照的に) 時間反転対称な2次元電子系において up スピン電子と down スピン電子の2種のエッジ流が各々逆向きに回転しており、その結果スピホール伝導度が量子化する、という現象である。Kane-Mele 理論の提案の後、すぐに量子スピホール効果の観測が成された [14]。量子スピホール系は up スピン電子と down スピン電子に逆向きの内部磁場が印加されている2層の量子ホール系と解釈することができる。現在では、量子スピホール系は2次元トポロジカル絶縁体と呼ばれている。このトポロジカル絶縁体の理論・実験研究を契機に、自発的対称性の破れを伴わないバンド絶縁体において、系の境界(表面、端)に安定なギャップレス状態を持つ量子相が物性物理学分野で広く認識され、総じてトポロジカル(絶縁体)相やトポロジカル量子相 [8, 15–17] などと呼ばれるようになった(より正確には symmetry-protected topological 相 [18, 19] という概念が定着しつつある)。上記の2次元トポロジカル絶縁体や量子ホール状態は代表的かつ実験的に実現しているトポロジカル絶縁体相の2つである。各トポロジカル量子相は、そのハミルトニアンや基底状態から定義されるトポロジカル不変量の値で分類される: これが非自明な値を持つか否かによって、バンド絶縁体はノーマルな絶縁体相かトポロジカルな絶縁体相かに分類することができるのである。既に触れた様に、量子ホール状態はチャーン数(後の章で解説する)と呼ばれるトポロジカル不変量によって特徴づけられ、しばしばチャーン絶縁体とも呼ばれる。トポロジカル相は一般にトポロジカル不変量と同じ数のギャップレスの表面状態を持ち(バルク・エッジ対応)、この表面状態が量子ホール効果に代表されるトポロジカル相の特異な物理現象を担っている。

トポロジカル絶縁体の発見は、系を波数空間の波動関数で定義されるトポロジカルな量で分類する、または対象とする系に特徴的な物理現象をトポロジカルな量から理解する、という新たな考え方を物性物理学にもたらした。この考え方は、単純なバンド絶縁体に限らず、あらゆる量子多体系において展開・発展している。特に、スピントロニクスとの関連し、近年磁性絶縁体(局在スピン系)におけるマグノン(スピン波)の輸送現象のトポロジカルな考え方による理解が急速に発展している。Fujimoto は伝導電子系におけるホール効果のアナロジーから、局在スピン系におけるマグノンのホール効果について理論的に考察した [20]。これは電荷をもたない粒子によるホール効果である。彼は磁場勾配を特定の2次元量子スピン系に印加すると、勾配の垂直方向にマグノン(スピン波)スピン流によるホール効果が生じることを示した。しかしながら、実際の物質でナノスケールの磁場勾配を与えることや保存流ではないスピン流の直接的な検出は容易ではない。そこで2010年、Katsura らは久保公式に基づいた解析から、適当なスピン系において(磁場勾配の代わりに)熱勾配を印加することでマグノン(スピン波)熱ホール効果が生じ得ることを理論的に予言し、その直後に Onose らによって強磁性絶縁体におけるマグノン熱ホール効果が実証された [21, 22]。ただし、熱勾配下での輸送現象を理論的に扱う際、久保公式に補正項が加わることが電子系で知られている [23, 24]。そこで Matsumoto らは電子系における議論をボソンであるマグノンの系に応用し、補正項を加えたマグノンの熱ホール伝導度の表式を導出した [25, 26]。これらのマグノン系のホール効果においても、マグノンバンドから定義されるベリー曲率がホール伝導度に直結するのである。後に解説するように、現在では、マグノンバンドにベリー曲率をもたらす現実的なルートの1つがジャロシンスキー・守谷(DM)相互作用によって与えられることが広く知られている。

さて、上記段落では電子系以外の系のホール効果としてマグノン熱ホール効果に関する先行研究について述べた。しかしながら磁性絶縁体にはマグノン以外にも多種の寿命の長い準粒子が存在する。一般的な磁性絶縁体は、基底状態として何らかの磁気秩序状態が選ばれる。マグノンは、その基底状態からの揺ら

ぎを量子化した磁気準粒子であり、1つのマグノン系全体のスピンの $z$ 成分を1だけ変える。このマグノンによく似た磁気準粒子としてトリプロンと呼ばれるものがある。トリプロンはスピンギャップを持つ量子スピン系でしばしば現れるスピン $S = 1$ のギャップフルな3重項磁気励起である。典型的には、局所的なシングレットペア（ダイマー）が弱く結合した系（スピンパイエルス相など）でしばしば現れる励起であり、この場合、シングレット（ダイマー）状態を壊して生成されるトリプレット状態がまさにトリプロン励起に対応する。ごく最近 Penc らは、Matsumoto らの熱ホール伝導度の公式を応用し、2次元スピンギャップ系である Shastry-Sutherland モデルにおいてトリプロンが熱ホール効果を起こすことを理論的に示している [27]。この他の代表的な磁気準粒子としてスピノンやマグノンペアなどが知られている。スピノンはマグノンが2つに分離した磁壁として理解でき、これはスピン $1/2$ の1次元反強磁性鎖において現れることがよく知られている [28–30]。また、数種類の2次元量子スピン液体の低エネルギー励起としてスピノンが現れることも期待されている [31, 32]。マグノンペアは、言葉の通り、2つのマグノンが束縛して1つの準粒子として振る舞うもので、幾つかのフラストレート磁性体で現れることが知られている [33–35]。特にマグノンが局在しやすい（つまりフラットバンドが生じやすい）フラストレート磁性体や低次元磁性体でよく現れる。これらの磁気準粒子は、十分低エネルギー領域を考えると寿命の長い自由粒子とみなすことができる。先行研究で示されたマグノン熱ホール効果は、このように十分寿命の長い準粒子（ボソン）に対して有効な理論である。

以上のことから、磁性体においてマグノン以外の磁気準粒子のトポロジカルな性質に依存して発現する物理現象は十分に期待することができる。このような状況を踏まえて、本研究で我々は、マグノンペアによる熱ホール効果を理論的に探索する。上記のように、マグノンペアが現れる系は幾つか知られているが、本研究では、双2次相互作用を持つパイロクロア反強磁性体（以下、パイロクロア系） [36, 37] と弱く結合した $S = 1/2$ フラストレート zigzag スピン鎖の2次元磁性体（以下、zigzag スピン鎖系） [38–40] の2つの系を考える。いずれの系も、強磁場を印加して実現する飽和磁化状態において、マグノンに加えてマグノンペアも低エネルギー励起状態として現れることが知られている。パイロクロア系では、格子によるフラストレーションと双2次相互作用がマグノン間に引力を与え、一方、zigzag スピン鎖系では、スピン鎖内の2つのフラストレートする交換相互作用 ( $J_1$  と  $J_2$ ) がマグノン間引力をもたらす。上段落で触れたが、マグノン熱ホール効果では、DM 相互作用がマグノンバンドにベリー曲率を与え、その結果、有限の熱ホール伝導度が発生することが知られている。一方、マグノンペアに DM 相互作用がどのような影響を及ぼすのか、ということも含めて、マグノンペアの輸送現象全般はほぼ解明されていないと言ってよい。本研究の主要な目的は、マグノンペアが如何なる条件の下で熱ホール効果に寄与し得るか、どのような場合にそのベリー曲率が有意な値を取るのか、ということについて、上記の具体的な2つの系（パイロクロア系と zigzag スピン鎖系）を解析し明らかにする、ということである。解析の結果、我々はこの問いに対する回答の一部を得ることが出来た。特に、適当な条件下では、熱ホール伝導度において、マグノンだけでなくマグノンペアが無視できない寄与を与え、熱ホール効果に本質的に影響を与え得ることを明らかにした。これらの結果について以下の章で詳細に解説する。

既に触れた様に、マグノンペア状態は、しばしばフラストレート磁性体や低次元磁性体の飽和磁化状態（外部磁場によってスピンのすべてが磁場の方向を向いた完全偏極状態）においてマグノンとともに低エネルギー励起として登場する。この状況で外部磁場を弱めていくと、マグノンとマグノンペアのバンド構造に応じて、どちらかが先にボーズアインシュタイン凝縮（BEC）を起こす。外部磁場を $S^z$ 方向として、

マグノンが BEC する場合は、 $\langle S^{xy} \rangle \neq 0$  となり、これは横磁化を持つ磁気構造が発生することを意味する。これが標準的な反強磁性体において強磁場領域の磁化過程で起きる現象である。一方、マグノンペアが先に凝縮する場合、 $\langle S_i^+ S_j^+ + \text{h.c.} \rangle \neq 0$  が生じる。これは磁場に垂直面内における磁気四極子秩序（スピンネマティック秩序とも呼ばれる）の発生を意味している。実際、マグノンペア状態やそのスペクトルは、スピンネマティック秩序相という新しい秩序状態を探索する為の重要なエレメントとしてこれまで研究されてきた側面が非常に強い。上記のように、スピンネマティック相を見つけることは、マグノンペアが BEC を起こす系を見つけることとも言える訳である。この意味で、本研究は、マグノンペア状態をスピンネマティック秩序とは別の視点からとらえ、磁性体における輸送現象の新しいキャリアとしての新しい役割を理論的に示した、ともいえるだろう。

最後に、我々の研究を近年急速に発展しているスピントロニクス観点から眺めてみよう [7,8]。エレクトロニクスが「電子が持つ電荷の輸送現象（電流）を利用して高速高性能の情報処理を目指す学問分野」であるのに対して、スピントロニクスは「電子が持つスピン自由度を利用してエレクトロニクスをしのぐ情報処理方法を探索する分野」である。スピントロニクスで重要な役割を担うのが「スピン自由度（スピン角運動量）の流れ」であるスピン流である。スピン流は大まかに2つのタイプに分けることができる。1つは電子によるスピン流、もう一方が磁気励起によるものである。前者は、スピン偏極した電子が流れることで電流とともに生じるスピン流である。後者は、電子自身は動かずに磁気準粒子（マグノンやスピノンなど）が流れることによって生じるスピン流である。電流とともに生じる前者のスピン流には大きなジュール熱が伴い、長距離（mm スケール）のスピン流輸送において大きなエネルギー損失が発生する。これに対して、磁気励起によるスピン流は相対的に伝搬距離が長く、またジュール熱も非常に小さい。それ故、これらの特徴を生かした磁性絶縁体によるスピントロニクスデバイスの開発が期待されている。とりわけ、マグノンスピン流による輸送現象の研究は、ここ10年ほどの間に急速に発展し、マグノンを利用したスピントロニクスはしばしばマグノニクスとも呼ばれている。代表的なマグノンスピン流の整流現象として、ここまで議論してきたマグノン熱ホール効果（マグノンスピン流の横伝導）と、スピンゼーバック効果（マグノンスピン流の縦伝導）[41] が良く知られており、これらに関する研究は現在も精力的に進められている。我々が本論文で対象とするマグノンペアの流れも当然スピン流と見做すことができる。しかも、マグノンペア1個当たりの担う角運動量は当然マグノン1個の2倍である。したがって、マグノンペアの熱ホール効果の研究は、基礎研究にとどまらず工学的応用の観点からも重要なテーマと考えることができる。

## 1.2 論文の構成

以下、各章の構成について述べる。第2章は我々が解析する熱ホール効果の理論的な道具について解説する。まず、電子系の量子ホール効果のレビューをし、複素ホッピングがベリー曲率を与えることを Haldane のハニカムモデルを用いて解説する。続いてマグノン熱ホール効果の理論と熱ホール伝導度の導出についてレビューし、電子系のホール効果との類似点と相違点について述べる。最後に Fukui らが提案したベリー曲率とチャーン数の数値的な見積もり方法を紹介する。

既に述べたように、本研究ではマグノンペアが現れる典型例として、双2次スピン相互作用を有するパイロクロア反強磁性体の強磁場領域と、 $S = 1/2$  フラストレート zigzag スピン鎖が弱く結合した2次元

磁性体の強磁場領域の2つの系を採り上げる。第3章では、2つのモデルを簡単に解説し、強磁場領域におけるマグノン及びマグノンペアの分散関係を示す。第4章に我々の主要な結果を示す。まず、熱ホール伝導度を求める上で最も重要なベリー曲率を、前章の分散関係を基にして第2.4節でレビューした Fukui らの方法を用いて計算する。そのベリー曲率と Matsumoto らによる熱ホール伝導度の公式を応用し、対象とする2つの系においてマグノンペアとマグノンの熱ホール伝導度の温度依存性及び磁場依存性を解析する。我々は、マグノンペアが熱ホール伝導度に有意に寄与し、熱ホール効果のキャリアとして本質的に重要である場合があることを明らかにする。

第5章で、主要な結果をまとめ、その意義について議論する。我々の結果は、新しい準粒子であるマグノンペアが実際の磁性体の熱ホール効果を通じて観測され得ることを示唆するものであり、今後の実験研究が期待される。



## 第 2 章

# フェルミオン系とボソン系におけるホール効果

### 2.1 整数量子ホール効果（チャーン絶縁体）

本節では、本研究の主題であるボソンによる熱ホール効果との比較のため、電子系で起こる整数量子ホール効果を探り上げてレビューする。また、Haldane のハニカムモデルを紹介し、ホッピングに位相が伴うときに有限のベリー曲率が生じる一例を示す。

von Klitzing らによって発見された量子ホール効果の実験は図 2.1 のように描ける。彼らは半導体シリコンを用いて生成した 2 次元電子系に面直方向に強磁場を印加し、面内方向に電場をかけたとき、磁場と電場の垂直方向にホール電流が生じ、そのホール伝導度とびとびの値を持つことを見つけた。これは整数量子ホール効果と呼ばれる。

これに対して Thouless, Kohmoto, Nightingale, den Nijs は久保公式に基づき、2 次元電子系のバンド絶縁体において、一般に温度  $T = 0$  でのホール伝導度が  $e^2/h$  ( $e, h$  はそれぞれ素電荷、プランク定数) の整数倍に量子化されることを示し、von Klitzing らの整数量子ホール効果の実験を見事に説明した [5]。ここでは彼らの計算の考え方を簡単に述べ、結果を示すのにとどめる。2 次元電子系に強磁場を印加するとランダウ量子化が起こる。フェルミエネルギーがランダウ準位の間にくると、この系は絶縁体となる。こ

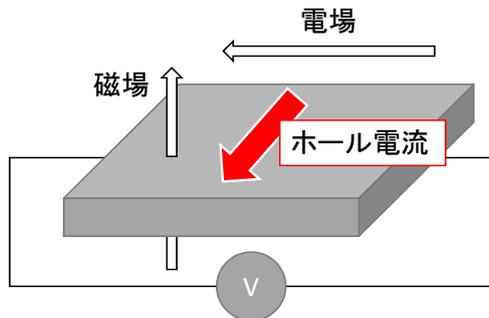


図 2.1 電子系のホール効果の実験設定。磁場と電場に対して垂直方向にホール電流が生じる。

の系に  $y$  方向に電場をかけたとき、久保公式から  $x$  方向の電流が計算できる。その結果得られるホール伝導度は、ベリー曲率とフェルミ分布関数の積をブリルアンゾーン内で積分した形で与えられる。特に絶対零度におけるホール伝導度は、フェルミ分布関数がステップ関数的な性質を持つことから、以下のように、占有されたバンドについてブリルアンゾーン内で単純にベリー曲率を足し上げたもので書くことができる。

$$\sigma_{xy} = \frac{e^2}{h} \nu; \quad \nu \equiv \sum_{n: \text{filled}} \nu_n = -\frac{1}{2\pi} \sum_{n: \text{filled}} \int_{\text{BZ}} d^2\mathbf{k} \Omega_n^z(\mathbf{k}) \quad (2.1)$$

ここで、 $n$  はバンドインデックスで、 $\nu_n$  は  $n$  番目のバンドで定義されるチャーン数と呼ばれる系のトポロジカル量であり、整数である。また、 $\Omega_n^z(\mathbf{k})$  は波数空間における  $n$  番目のバンドの電子状態  $|n, \mathbf{k}\rangle$  で定義されるベリー曲率の  $z$  成分であり、ベリー曲率はベリー接続  $\mathbf{A}_n$  を用いて次のように定義される (付録 A)。

$$\text{ベリー接続: } \mathbf{A}_n(\mathbf{k}) = i \langle n, \mathbf{k} | \nabla_{\mathbf{k}} | n, \mathbf{k} \rangle \quad (2.2)$$

$$\text{ベリー曲率: } \Omega_n(\mathbf{k}) = \nabla_{\mathbf{k}} \times \mathbf{A}_n(\mathbf{k}) \quad (2.3)$$

整数量子ホール系はトポロジカル量であるチャーン数で分類できるため、チャーン絶縁体と呼ばれることもある。

整数量子ホール系の具体例として、Haldane が考えたハニカム格子上的 tight-binding モデル (図 2.2) を紹介する [42]。ハニカム格子は単位胞に 2 つのサイトを持ち、図 2.2 では赤と青に塗り分けている。最近接サイト間のみの実数ホッピング (図 2.2 中の実線) を考えたハニカム格子上的 tight-binding モデルでは、電子状態には線形分散が現れ、2 枚のバンドはブリルアンゾーンの K 点 (図 2.6 参照) に縮退点を持つ (図 2.3 上図)。Haldane は次近接までのホッピング (図 2.2 中の破線) を持つ tight-binding モデルを考えた。次近接サイトのホッピング  $t'$  は複素数であり、矢印の方向へのホッピングを  $t' = |t'|e^{i\phi}$  と定義する。逆向きへのホッピングは  $|t'|e^{-i\phi}$  となる。複素数のホッピングは格子に疑似的な磁束を与え<sup>\*1</sup>、これによって K 点における縮退が解け、上下のバンドで  $\pm 1$  のチャーン数を持つ (図 2.3 下図)。フェルミエネルギーがバンドギャップの間にあるとき、この系はチャーン絶縁体となり、整数量子ホール効果が起こる。

\*1 複素数のホッピングを導入したこのモデルは、磁束が格子を貫いているモデルとして理解できる。まず、あるサイト  $a, b, c$  を考える。サイト間のホッピングを複素数で  $t_{ab}, t_{bc}, t_{ca}$  とかき、それらの位相をそれぞれ  $\phi_{ab}, \phi_{bc}, \phi_{ca}$  と書く。粒子が  $a \rightarrow b \rightarrow c \rightarrow a$  とホッピングするときに出てくる係数は以下のように書ける。

$$t_{ab}t_{bc}t_{ca} = |t_{ab}t_{bc}t_{ca}| e^{i(\phi_{ab} + \phi_{bc} + \phi_{ca})} \quad (2.4)$$

一方、磁場  $\mathbf{B}$  がある連続系において、電子が閉曲線上動くとき、電子の終状態と始状態の位相差は  $\phi = e/\hbar \int \mathbf{B} \cdot d\mathbf{S} = e/\hbar \oint \mathbf{A} \cdot d\mathbf{l}$  で書かれる。1 つめの積分は電子が動く閉曲線を境界を持つ曲面での面積分、2 つめの積分は閉曲線上の線積分である。また、 $\mathbf{A}$  は  $\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}$  で定義されるベクトルポテンシャルである。これは Aharonov-Bohm 効果と呼ばれ、電子が通る経路上に磁場がなくとも、閉曲線内に磁束があれば電子はその磁場の影響を受けることを示している。このことから、複素数のホッピングによって得られた始状態と終状態の位相差は

$$\phi_{ab} + \phi_{bc} + \phi_{ca} = \frac{e}{\hbar} \int \mathbf{B} \cdot d\mathbf{S} \quad (2.5)$$

と解釈でき、ループの中を磁束が貫いていると見ることができる。

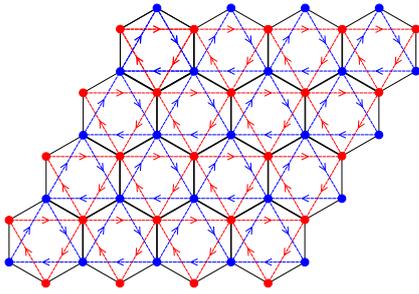


図 2.2 Haldane のハニカム格子。単位胞内に含まれる 2 サイトを赤と青に区別して描いた。実線 (黒) に実ホッピング、破線 (赤、青) に複素ホッピングがある。複素ホッピングは向きによって位相の符号が反転するが、ここでは矢印の向きを正とする。

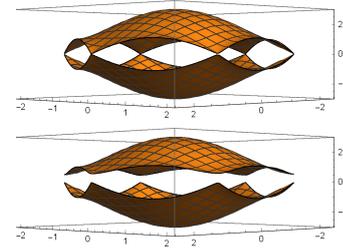


図 2.3 Haldane のハニカムモデルにおける分散関係。上図は最近接サイト間の実数ホッピングのみがある場合の分散関係である。ブリルアンゾーンの境界である K 点にバンドが縮退する点がある。下図は  $t' = |t'|e^{i\phi}$  ( $|t'| \neq 0$ ,  $\phi \neq 0$ ) のときの分散関係である。K 点の縮退が解け、ギャップが開いている。

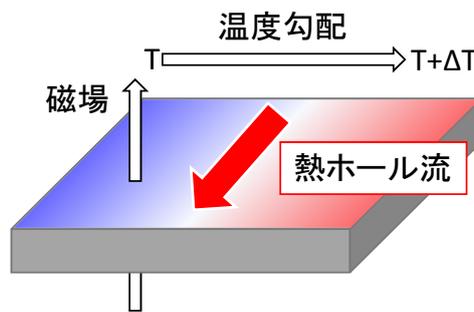


図 2.4 熱ホール効果の実験設定。温度勾配に対して垂直方向に熱ホール流が生じる。磁場は必須ではないが、本研究では磁場を印加して生じる飽和磁化状態における熱ホール効果を考える。

## 2.2 マグノン熱ホール効果の定式化

本節では、本研究の主題である熱ホール効果について Katsura らと Matsumoto らの先行研究を紹介し、マグノンペアを考慮した熱ホール伝導度について考察する。

熱ホール効果の実験設定は一般に図 2.4 のように描け、電場 (電位差) の代わりに温度勾配を与えるとその垂直方向に熱ホール流が生じる。一般に磁場は必要でないが、本研究では図 2.4 のように磁場を印加して生じる飽和磁化状態における熱ホール効果を考える。Katsura らはマグノン系における熱ホール効果について議論し、Onose らによって実際にパイロクロア強磁性体  $\text{Lu}_2\text{V}_2\text{O}_7$  でマグノン熱ホール伝導度が検出された。基本的な電子系のホール効果がローレンツ力によって誘起される<sup>\*2</sup>のに対して、マグノンは電荷のない粒子であり、磁束からローレンツ力を受けず有限のベリー曲率によってホール効果が生じる。また、電荷をもたない粒子は電場によって駆動されず、Katsura らは温度勾配によってマグノンを駆動す

<sup>\*2</sup> あらわに磁場がなくても、Haldane のハニカムモデルのように疑似的に磁束を導入することで有効的にローレンツ力が働きホール効果が生じていた。

ることを考えた。

一般の3次元結晶における熱ホール効果の定式化をここで簡単に解説する。熱ホール効果は温度勾配によって生じる輸送現象であるが、温度勾配が存在する場合の久保公式には補正項が加わる。Luttingerは温度勾配がある場合の久保公式を書き直し、SmrčkaとStředaはこれを具体的に計算し、従来の久保公式に補正項が加わる形になっていることを示した[23,24]。Luttingerは電子系における熱ホール伝導度の導出の中で、現象論的に熱輸送係数 $L$ を用いて電流 $\bar{\mathbf{J}}$ とエネルギー流 $\bar{\mathbf{J}}^E$ を次のように書いた。

$$\bar{\mathbf{J}} = (L^F)_{11} \left[ \mathbf{E} + \frac{T}{e} \nabla \left( \frac{\mu}{T} \right) \right] + (L^F)_{12} \left[ T \nabla \left( \frac{1}{T} \right) - \frac{\nabla \psi}{c^2} \right] \quad (2.6)$$

$$\bar{\mathbf{J}}^E = (L^F)_{12} \left[ \mathbf{E} + \frac{T}{e} \nabla \left( \frac{\mu}{T} \right) \right] + (L^F)_{22} \left[ T \nabla \left( \frac{1}{T} \right) - \frac{\nabla \psi}{c^2} \right] \quad (2.7)$$

$\mathbf{E}$ は電場、 $\psi$ はgravitational fieldと呼ばれる仮想的に導入された場で、温度勾配を粒子に直接働く力(dynamical force)としてハミルトニアンに取り入れるための場となっている。 $e, c, T, \mu$ はそれぞれ素電荷、光速、温度、化学ポテンシャルである。SmrčkaとStředaは、この熱輸送係数が $(L^F)_{ij}^{\alpha\beta} = (S^F)_{ij}^{\alpha\beta} + (M^F)_{ij}^{\alpha\beta}$  ( $i, j = 1, 2, \alpha, \beta = x, y$ )と書けることを示した。ここで、第1項の $(S^F)_{ij}^{\alpha\beta}$ は熱勾配がないときの久保公式から導かれる自明な項、第2項の $(M^F)_{ij}^{\alpha\beta}$ は熱勾配の存在により導かれる非自明な項である。Matsumotoらは、電子系におけるこれらの理論をマグノン系に応用した。その際、

$$\frac{(L^F)_{11}}{e^2} \rightarrow (L^B)_{11}, \quad \frac{(L^F)_{12}}{e} \rightarrow (L^B)_{12}, \quad (L^F)_{22} \rightarrow (L^B)_{22} \quad (2.8)$$

とすることで、マグノン流 $\mathbf{J}$ とマグノンのエネルギー流 $\mathbf{J}^E$ を以下のように書いた。

$$\mathbf{J} = (L^B)_{11} \left[ -\nabla U - T \nabla \left( \frac{\mu}{T} \right) \right] + (L^B)_{12} \left[ T \nabla \left( \frac{1}{T} \right) - \frac{\nabla \psi}{c^2} \right] \quad (2.9)$$

$$\mathbf{J}^E = (L^B)_{12} \left[ -\nabla U - T \nabla \left( \frac{\mu}{T} \right) \right] + (L^B)_{22} \left[ T \nabla \left( \frac{1}{T} \right) - \frac{\nabla \psi}{c^2} \right] \quad (2.10)$$

マグノンは電荷をもたず、電場で駆動できないため、試料の端の効果である閉じ込めポテンシャル $U$ をマグノンを駆動する力としている。Matsumotoらは、これらのマグノン系における熱輸送係数が、マグノンのブロッホ関数で定義されるベリー曲率 $\Omega(\mathbf{k})$ を用いて、以下のように表されることを明らかにした[26]。

$$(L^B)_{11}^{\alpha\beta} = \frac{1}{\hbar V} \sum_{n, \mathbf{k}} \rho_n \varepsilon_{\alpha\beta\gamma} \Omega_n^\gamma(\mathbf{k}) \quad (2.11)$$

$$(L^B)_{12}^{\alpha\beta} = \frac{1}{\hbar V} \sum_{n, \mathbf{k}} (\mu \rho_n + k_B T c_1(\rho_n)) \varepsilon_{\alpha\beta\gamma} \Omega_n^\gamma(\mathbf{k}) \quad (2.12)$$

$$(L^B)_{22}^{\alpha\beta} = \frac{1}{\hbar V} \sum_{n, \mathbf{k}} (\mu^2 \rho_n + 2\mu k_B T c_1(\rho_n) + (k_B T)^2 c_2(\rho_n)) \varepsilon_{\alpha\beta\gamma} \Omega_n^\gamma(\mathbf{k}) \quad (2.13)$$

$n$ はバンドインデックス、 $V$ は系の体積、 $\varepsilon_{\alpha\beta\gamma}$ は完全反対称テンソル、 $\Omega_n^\gamma(\mathbf{k})$ はベリー曲率の $\gamma$ 成分、 $k_B$ はボルツマン定数、 $\hbar$ はプランク定数を $2\pi$ で割ったものである。 $\rho_n \equiv \rho(\varepsilon_{nk})$ は $n$ 番目のバンドにおける

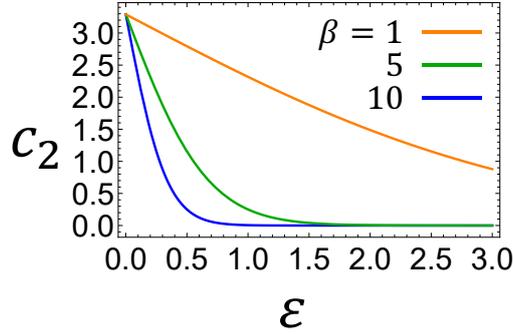


図 2.5  $c_2(\rho)$  のエネルギー依存性。  $\rho = [\exp(\beta(\varepsilon - \mu)) - 1]^{-1}$  であり、  $\varepsilon$  はエネルギー、  $\beta = (k_B T)^{-1}$  である。  $\mu = 0$  として 3 種類の温度における  $c_2$  を示した。低温 ( $\beta = 10$ ) になるほど低エネルギー側で大きな値を持つ。

ボーズ分布関数で、  $\rho_n = 1 / [e^{(\varepsilon_{nk} - \mu)/k_B T} - 1]$  である ( $\varepsilon_{nk}$  は  $n$  番目のバンドのマグノンスペクトル)。また、  $c_1(\rho)$ ,  $c_2(\rho)$  は以下の形で書かれる関数である。

$$c_1(\rho) = (1 + \rho) \log(1 + \rho) - \rho \log \rho \quad (2.14)$$

$$c_2(\rho) = (1 + \rho) \left( \log \frac{1 + \rho}{\rho} \right)^2 - (\log \rho)^2 - 2\text{Li}_2(-\rho) \quad (2.15)$$

$\text{Li}_n(z)$  は polylogarithm function で、  $\text{Li}_2(z) = \sum_{k=1}^{\infty} z^k / k^2 = -\int_0^z dt \log(1-t)/t$  と書ける。

熱ホール伝導度は、熱流  $\mathbf{J}^Q$  から定義される。熱流はエネルギー流  $\mathbf{J}^E$  と粒子流  $\mathbf{J}$  によって  $\mathbf{J}^Q = \mathbf{J}^E - \mu \mathbf{J}$  と書かれる (付録 B)。したがって、マグノン流 (2.9) とマグノンのエネルギー流 (2.10) から、熱流を以下のように書くことができる。

$$\mathbf{J}^Q = \left[ (L^B)_{21} - \mu (L^B)_{11} \right] (-\nabla U - \nabla \mu) - \left[ (L^B)_{22} - \mu (L^B)_{12} \right] \frac{\nabla \psi}{c^2} - \frac{1}{T} \left[ (L^B)_{22} + \mu^2 (L^B)_{11} - 2\mu (L^B)_{12} \right] \nabla T \quad (2.16)$$

$-\nabla T$  の係数が熱伝導度に対応し、マグノン熱ホール伝導度は以下のように書ける。

$$\kappa^{\alpha\beta} = \frac{1}{T} \left[ (L^B)_{22}^{\alpha\beta} + \mu^2 (L^B)_{11}^{\alpha\beta} - 2\mu (L^B)_{12}^{\alpha\beta} \right] \quad (2.17)$$

特に、  $\mu = 0$  のとき以下のように表される。

$$\kappa^{xy} = \frac{(L^B)_{22}^{xy}}{T} = \frac{k_B^2 T}{\hbar V} \sum_{n, \mathbf{k}} c_2(\rho_n) \Omega_n^z(\mathbf{k}) \quad (2.18)$$

したがって、マグノン熱ホール伝導度を計算するにはマグノンのバンド構造とその波動関数から定義されるベリー曲率が必要であることが分かる。また、  $c_2$  は低エネルギーで大きな値をとるため (図 2.5)、低エネルギー領域 (バンドの底) でベリー曲率が大きな値を持つと熱ホール伝導度が生じることが分かる。また、彼らの議論はマグノンに限らず、様々な寿命の長い磁気準粒子に適用可能である。

本研究ではマグノンとマグノンペア両方がいる状況を考える。このとき、マグノンとマグノンペアがどちらも長寿命の準粒子で粒子間相互作用が無視できる自由粒子とみなせるならば、スピン流

はマグノン流  $\mathbf{J}_{\text{magnon}}$  とマグノンペア流  $\mathbf{J}_{\text{paired-magnon}}$  によって  $\mathbf{J} = \mathbf{J}_{\text{magnon}} + \mathbf{J}_{\text{paired-magnon}}$  と書け、エネルギー流も同様に  $\mathbf{J}^E = \mathbf{J}_{\text{magnon}}^E + \mathbf{J}_{\text{paired-magnon}}^E$  となる。さらに、自由粒子のエネルギー流は  $\mathbf{J}^E = \frac{1}{2V} \sum_{\mathbf{k}} b_{\alpha}^{\dagger}(\mathbf{k}) (\partial_{\mathbf{k}} \mathcal{H}^2(\mathbf{k}))_{\alpha\beta} b_{\beta}(\mathbf{k})$  と書ける事が分かっている [21]。ここで、 $V$  は系の体積、 $\alpha, \beta$  は単位胞に含まれるサイトインデックス、 $b$  はマグノン演算子、 $\mathcal{H}$  は相互作用のないボソンのハミルトニアンであり、繰り返す添え字  $\alpha, \beta$  については和をとる。したがって、マグノンとマグノンペアの系では

$$\mathbf{J}^E = \frac{1}{2V} \sum_{\mathbf{k}} b_{\alpha}^{\dagger}(\mathbf{k}) (\partial_{\mathbf{k}} \mathcal{H}_{\text{magnon}}^2(\mathbf{k}))_{\alpha\beta} b_{\beta}(\mathbf{k}) + \frac{1}{2V} \sum_{\mathbf{k}} c_{\alpha}^{\dagger}(\mathbf{k}) (\partial_{\mathbf{k}} \mathcal{H}_{\text{paired-magnon}}^2(\mathbf{k}))_{\alpha\beta} c_{\beta}(\mathbf{k}) \quad (2.19)$$

と書ける。ここで、 $c$  はマグノンペアの演算子で、 $\mathcal{H}_{\text{magnon}}, \mathcal{H}_{\text{paired-magnon}}$  はそれぞれ相互作用のないマグノン、マグノンペアのハミルトニアンである。マグノンペア  $c$  について、2つのマグノンペアの存在位置が重なる時、マグノンペア間の交換関係が綺麗なボソンの交換関係からずれる。しかし、以下で我々が考える低温領域ではマグノンペアが希薄であり、ペアの重なりの効果は無視できるため、熱ホール伝導度の計算において我々はマグノンペアを単純なボーズ粒子として扱うことができる。したがって、マグノンとマグノンペアのバンド構造と波動関数から定義されるベリー曲率を用いて式 (2.18) から熱ホール伝導度を計算できる。第3章でマグノンとマグノンペアのバンド構造を明らかにし、第4章でベリー曲率を求め熱ホール伝導度の解析を行う。

## 2.3 フェルミオン系とボソン系のホール効果の類似点と相違点

第2.1節でチャーン絶縁体における電子の量子ホール効果を、第2.2節で磁性絶縁体におけるマグノン(ボソン)の熱ホール効果を紹介した。

フェルミオン系であってもボソン系であっても、(熱)ホール伝導度は占有されたバンドのベリー曲率で表される。しかしながら、ボソン系では1つの状態に何個でも粒子が入れるために低エネルギー部分のバンド構造が重要になる。極端な話をすると、たとえチャーン数が0であっても低エネルギー部分のバンドが大きなベリー曲率を持てば熱ホール伝導度が現れることがある。

## 2.4 ベリー曲率の数値的な見積もり方法

本節では、熱ホール伝導度を計算するうえで重要な物理量となるベリー曲率について、Fukui らが考案した数値的な見積もり方法をレビューする [43]。

ベリー曲率 (2.3) を求める愚直な方法として、微分を離散的な差に置き換えることが考えられる。波数空間の各点における固有状態は数値計算で求めることができる。しかしながら、微分を差分に置き換える際、各点における固有状態が滑らかに変化するように局所ゲージ固定をその都度行わなければならない、この方法は数値計算的なコストが非常に高い。

そこで Fukui らは格子ゲージ理論を用いて曲率を定義する方法を提案した。この方法の大きな利点は局所ゲージ固定を行う必要がないことである。ここでは簡単のため2次元系を考え、ブリルアンゾーンを  $0 \leq k_{\alpha} < 2\pi$  ( $\alpha = x, y$ ) とし、これを  $N_x \times N_y$  点に離散化する。離散化したブリルアンゾーン上の格子点  $k_l$  ( $l = 1, \dots, N_x N_y$ ) を

$$k_l = (k_{j_1}, k_{j_2}), \quad k_{j_{\alpha}} = \frac{2\pi j_{\alpha}}{N_{\alpha}}, \quad (j_{\alpha} = 0, \dots, N_{\alpha} - 1) \quad (2.20)$$

と書く。次に、 $n$  番目のバンドの波動関数からリンク変数  $U_\alpha(k_l)$  を以下のように定義する。

$$U_\alpha(k_l) \equiv \langle n, k_l | n, k_l + \hat{\alpha} \rangle / \mathcal{N}_\mu(k_l) \quad (2.21)$$

$|n, k_l\rangle$  は波数空間における  $n$  番目のバンドの固有状態、 $\hat{\alpha}$  は大きさ  $2\pi/N_\alpha$  の  $\alpha$  方向のベクトル、 $\mathcal{N}_\alpha(k_l) \equiv |\langle n, k_l | n, k_l + \hat{\alpha} \rangle|$  である。次に曲率を

$$\tilde{F}_{12}(k_l) \equiv \ln U_x(k_l) U_y(k_l + \hat{x}) U_x(k_l + \hat{y})^{-1} U_y(k_l)^{-1}, \quad -\pi < \frac{1}{i} \tilde{F}_{12}(k_l) \leq \pi \quad (2.22)$$

で定義する。ここで、曲率は対数関数の主値で定義されている。この曲率は波数空間で定義される  $n$  番目のバンドのベリー曲率の  $z$  成分と  $\Omega^z(k_l) = -\text{Im} \tilde{F}_{12}(k_l) / (|\hat{x}||\hat{y}|)$  のように対応している。Fukui らは、この和からチャーン数も正しく計算できることを示した。

最後に、この方法で第 2.1 節で紹介した Haldane のハニカムモデルにおけるベリー曲率とチャーン数を求めた結果を紹介する。図 2.6 に、次近接サイト間に複素数のホッピングを持つ場合の第 1 バンド（エネルギーが低い側のバンド）のベリー曲率を計算した結果を示す。ハニカム格子のブリルアンゾーンの端にある  $\mathbf{K}$  点に、大きなベリー曲率が現れている。 $\mathbf{K}$  点は複素数のホッピングの導入によりギャップが開いた点である。波数空間における  $n$  番目のバンドの状態  $|n, \mathbf{k}\rangle$  がブロッホ状態  $|u_{n\mathbf{k}}\rangle$  で書け、そのスペクトルが  $\varepsilon_{n\mathbf{k}}$  と表されるとき、ベリー曲率は以下のように書くことができる。

$$\Omega_n^\alpha(\mathbf{k}) = i\varepsilon_{\alpha\beta\gamma} \left\langle \frac{\partial u_{n\mathbf{k}}}{\partial k_\beta} \middle| \frac{\partial u_{n\mathbf{k}}}{\partial k_\gamma} \right\rangle = i\varepsilon_{\alpha\beta\gamma} \sum_{m(\neq n)} \frac{\langle u_{n\mathbf{k}} | \frac{\partial H}{\partial k_\beta} | u_{m\mathbf{k}} \rangle \langle u_{m\mathbf{k}} | \frac{\partial H}{\partial k_\gamma} | u_{n\mathbf{k}} \rangle}{(\varepsilon_{n\mathbf{k}} - \varepsilon_{m\mathbf{k}})^2} \quad (2.23)$$

すなわち、波数空間で定義される各バンドのベリー曲率は近接する他のバンドとのエネルギー差が小さいとき大きくなる傾向がある。このことから、Haldane のハニカムモデルにおいて、複素数のホッピングによりギャップが開く  $\mathbf{K}$  点で大きなベリー曲率が現れることを自然に理解できる。また、チャーン数も計算したところ上下のバンドで  $\pm 1$  となり、Fukui らの方法は確かに正しいベリー曲率とチャーン数を与える。

## 2.5 有限のマグノン熱ホール伝導度を得る条件

本節では、マグノンの熱ホール伝導度が現れるために重要だと考えられている DM 相互作用について述べる。DM 相互作用は 2 つのスピンの外積によって  $\mathbf{D}_{ij} \cdot (\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j)$  と表される。 $i, j$  はサイトインデックス、 $\mathbf{S}_i$  はサイト  $i$  のスピン演算子、 $\mathbf{D}_{ij}$  は DM 相互作用を与える DM ベクトルである。2 つの磁性サイト間に反転対称性がないとき、DM ベクトルが  $\mathbf{D}_{ij} \neq 0$  となる。現実の磁性体は配位子などの存在により、DM 相互作用を持つことが多い。また、系がどのような DM ベクトルを有するかは Moriya's rule [44] から決めることができる。

式 (2.18) から、有限の熱ホール伝導度を得るためには、チャーン数が有限である必要はないが、有限のベリー曲率が必要だとわかる。このベリー曲率が現れるためには、DM 相互作用などのマグノンのホッピングに位相を与える相互作用が重要な役割を果たすことが知られている。例えば DM ベクトルの  $z$  成分が 0 でないとき、

$$(\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j)^z = \frac{i}{2} (\mathbf{S}_i^+ \mathbf{S}_j^- - \mathbf{S}_i^- \mathbf{S}_j^+) \quad (2.24)$$

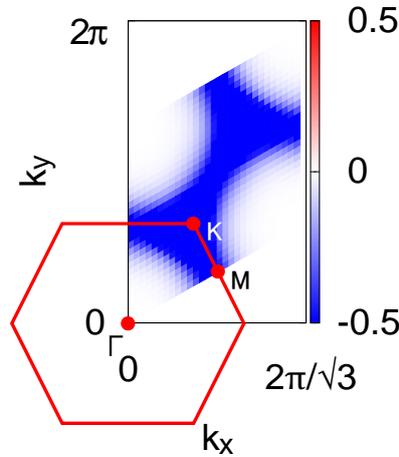


図 2.6 Haldane のハニカムモデルにおいて、複素次近接ホッピングを持つときのベリー曲率。赤線は第 1 ブリルアンゾーンで、 $\Gamma$ ,  $K$ ,  $M$  は対称性の高い点である。 $K$  点は複素ホッピングの導入によりギャップが開いた点に対応する。 $K$  点に大きなベリー曲率が現れている。

という項が出てくるが、これはまさにマグノンのホッピングに位相を与える。また第 2.1 節で、Haldane のハニカムモデルでは複素数のホッピングによって有限のチャーン数（ベリー曲率）が得られることを紹介した。すでに述べたように、ホッピングに位相を持つことは磁束が格子を貫いていることと等価である。これまでの先行研究から、マグノンのベリー曲率が出るために、この磁束を持つループが非等価な形を持つことが必要だと考えられている。例えば、図 2.7 のような DM ベクトルを持つカゴメ格子の場合、六角形のループを  $+2\phi$ , 三角形のループを  $-\phi$  の磁束が貫いている。そして、このとき有限のベリー曲率が現れる。一方、図 2.8 のような DM ベクトルを持つペロブスカイト強磁性体では  $+\phi$  と  $-\phi$  の磁束を持つ四角形のループが並んでいる。このときハミルトニアンは特殊な対称性を持ち、ベリー曲率が現れないことを示すことができる [45]。2012 年に Ideue らはパイロクロア構造、ペロブスカイト構造を持つ強磁性体について熱ホール伝導度の測定を試み、カゴメ格子を有するパイロクロア強磁性体は有限の熱ホール伝導度を示す一方、四角形のループしか持たないペロブスカイト強磁性体は熱ホール伝導度を示さないことを明らかにした [45]。ただし、対称性の高い格子であっても、磁気秩序や軌道秩序によって大きな単位胞を持つ物質はその限りではない。実際、Ideue らの測定で、軌道秩序によって大きな単位胞を持つペロブスカイト強磁性体において、有限の熱ホール伝導度が検出されている。

最後に、系の  $U(1)$  対称性を破る DM 相互作用について言及する。磁場を印加した方向の  $U(1)$  対称性を破る DM 相互作用<sup>\*3</sup>を持つ系では、スピнкаレントが定義できなくなり、線形応答理論の定式化が使えないように思える。しかしながら、DM 相互作用を摂動として扱い線形応答理論に基づいて熱ホール伝導度を計算し、実験を定量的に説明した先行研究 [21, 25] があることから、我々も DM 相互作用を摂動として扱い、上述の線形応答理論の定式化を応用する。

<sup>\*3</sup> 磁場を  $z$  方向に印加した場合、DM ベクトルの  $x, y$  成分から現れる項を指す。

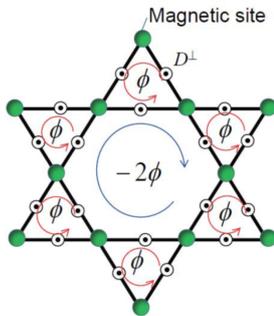


図 2.7 カゴメ格子における DM ベクトルと磁束 [45]。矢印の方向に 1 周すると、三角形のループでは  $\phi$ 、六角形のループでは  $2\phi$  の位相がマグノンに付与される。これは三角形と六角形のループをそれぞれ  $\phi$ 、 $-2\phi$  の磁束が貫くことに対応する（磁束の符号の違いは矢印の向きの違いから生じている）。この系では有限のベリー曲率が得られる。

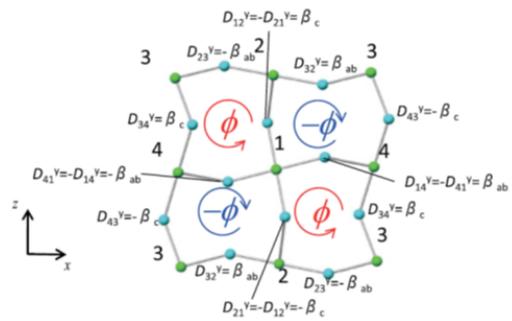


図 2.8 ペロブスカイト強磁性体における DM ベクトルと磁束 [45]。向かい合う辺の DM ベクトルが逆向き（例えば  $D_{23} = -D_{14}$ ）になっているため、四角形を 1 周しても位相がキャンセルされたい。この格子も磁束を持つが、格子を基本並進ベクトルの半分の長さを持つベクトルで並進移動させ、磁束の向きを反転させると元の状態に戻るという対称性を持つ。これに対応してハミルトニアンが特殊な対称性を持ち、ベリー曲率は 0 となる。



## 第 3 章

# マグノンとマグノンペアの分散関係

本研究では強磁場飽和磁化状態（磁場方向にスピンの完全に偏極した状態）においてマグノンペアが現れる系として、双 2 次相互作用を持つパイロクロア反強磁性体（以下、パイロクロア系）と  $S = 1/2$  フラストレート zigzag スピン鎖が弱く結合した 2 次元磁性体（以下、zigzag スピン鎖系）を採り上げる。本章では、熱ホール伝導度の計算に必要な情報の一つであるマグノンとマグノンペアの分散関係について、得られた結果を示す。

これらの系はマグノンペアが現れる系、ひいてはスピンネマティック状態を実現する系として盛んに研究されており、DM 相互作用がない場合、飽和磁化状態が基底状態となる強磁場領域でマグノンペアが現れることがよく知られている [35, 46]。本研究では、マグノン熱ホール効果を起こすのに重要である考えられている DM 相互作用を考慮する。DM 相互作用は一般に交換相互作用に比べて弱く、前章の最後で述べたように、以下の解析全般にわたって DM 相互作用は摂動項として取り扱う。

### 3.1 双 2 次相互作用を持つパイロクロア反強磁性体

本節では、パイロクロア格子における双 2 次相互作用を持つハイゼンベルグモデルについて先行研究をレビューし、パイロクロア格子の幾何学的性質と本研究で取り扱うパイロクロア系のモデルの詳細について述べる。続いて、3.1.1 節と 3.1.2 節では  $S^z$  軸周りの  $U(1)$  対称性を壊す DM 相互作用が存在しない場合のマグノンとマグノンペアの分散関係を解析する。最後に、3.1.3 節で  $U(1)$  対称性を破る DM 相互作用の効果を摂動論的に取り込む。この解析で、 $U(1)$  対称性を破る DM 相互作用がマグノンとマグノンペアの混成状態をもたらし、分散関係にレベル反発を生じさせることを示す。

パイロクロア格子における双 2 次相互作用を持つハイゼンベルグモデルはクロムスピネル酸化物  $\text{ACr}_2\text{O}_4$  ( $A = \text{Cd}, \text{Hg}, \text{Zn}$ ) [47–49] の磁性を記述する有効モデルとして提案され、そのハミルトニアンは

$$\mathcal{H} = \sum_{\langle i, j \rangle} \left[ J_1 \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + J_2 (\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j)^2 \right] - h \sum_i S_i^z \quad (3.1)$$

と書ける [36]。  $i, j$  はサイトインデックスで、和は最近接サイトペアについてとる。  $J_1, J_2$  はそれぞれ最近接サイト間にはたらく反強磁性交換相互作用 ( $J_1 > 0$ )、強的双 2 次相互作用 ( $J_2 < 0$ ) で、  $h$  は磁場に対応し、  $h = g\mu_B H$  である。ここで、  $g, \mu_B, H$  はそれぞれ  $g$  因子、ボーア磁子、外部磁場の大きさである。また、磁場  $H$  の方向に  $S^z$  軸をとっている。このハミルトニアンはクロムイオンが平衡位置からずれたと

きにスピン間の交換相互作用が変更を受ける効果と平衡位置に戻ろうとする弾性エネルギーを取り入れることで得られ、双2次相互作用  $J_2$  は負の値を持つ。

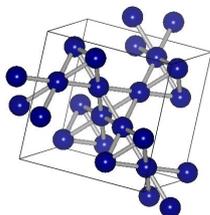


図 3.1 パイロクロア格子。四面体が頂点共有し、3次元的に繋がっている。

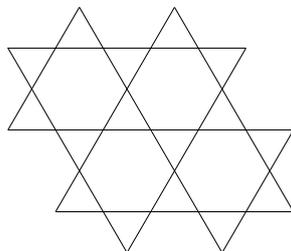


図 3.2 パイロクロア格子の(111)面に現れるカゴメ格子

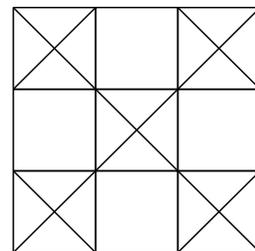


図 3.3 パイロクロア格子を[100]方向に射影して現れるチェッカーボード格子

ハミルトニアン (3.1) の磁場中相図は図 3.4 のように書ける [46]。縦軸を磁場  $h/J_1$ 、横軸を双2次相互作用  $J_2/J_1$  とする。 $J_2 = 0$  のときハミルトニアン (3.1) はハイゼンベルグモデルに対応する。図中の FP は、全てのスピンが磁場方向を向いた飽和磁化状態が基底状態となる完全偏極相である。FP の相境界にある点線と破線は飽和磁場に対応し、*nematic* ではマグノンペアの凝縮が起こりスピネマティック秩序相が現れると期待されている。この図から分かるように、 $J_2/J_1 \lesssim -0.04$  という非常に広いパラメータ領域で、マグノンペアがマグノンとともに低エネルギー励起として現れることが分かっている。また、本論文では触れないが、低磁場側には様々なスピン構造を持つ磁気相が現れ、本モデルの候補物質であるクロムスピネル酸化物の磁性研究も盛んに行われている [36, 37, 47–49]。図中の実線と破線はそれぞれ1次転移と2次転移を示す。

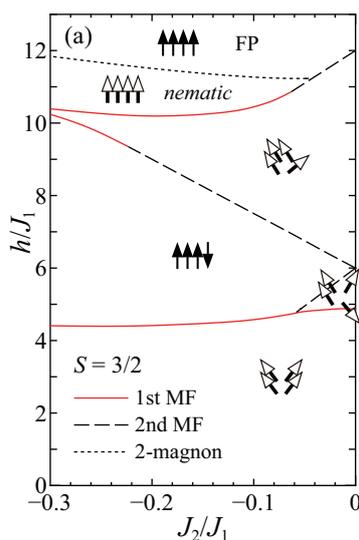


図 3.4 クロムスピネル酸化物の磁場中相図 [46]。実線 (赤)、破線 (黒) はそれぞれ1次転移、2次転移を表す。点線 (黒) はマグノンペアが凝縮する磁場 (飽和磁場) を示す。黒塗り矢印は磁場に対して変わらず、白抜き矢印は磁場に応じて変化するスピン状態を表す。*nematic* でマグノンペアが凝縮していると考えられている。

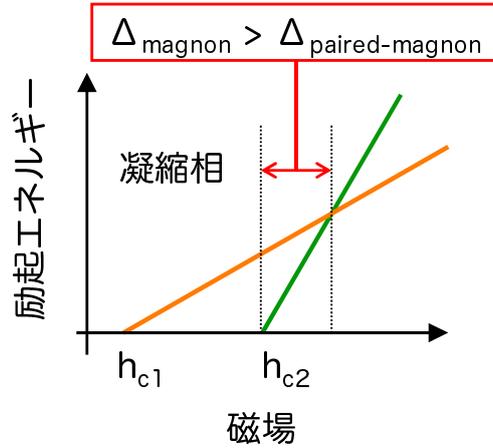


図 3.5 磁気準粒子の励起エネルギーと磁場の関係。橙線と緑線はそれぞれマグノンとマグノンペアのエネルギーを表す。 $h_{c1}$ ,  $h_{c2}$  はそれぞれ、磁場を下げていくとき、マグノンとマグノンペアが凝縮し始める磁場（臨界磁場）を表す。この図では  $h_{c2}$  が飽和磁場である。 $h_{c2}$  直上の両矢印で示した磁場領域では、マグノンペアのエネルギーギャップ  $\Delta_{\text{paired-magnon}}$  がマグノンのエネルギーギャップ  $\Delta_{\text{magnon}}$  より小さくなる。

ここで注目するのは飽和磁場近傍である。飽和磁場近傍では、以下で説明するマグノン局在状態が現れ、格子上下を動き回ることができるマグノンペアの励起エネルギーが下がり、その結果マグノンペアがよい磁気準粒子として存在する。相図にはマグノンペア凝縮相（スピンネマティック相）が現れる高磁場側の臨界磁場（図 3.4 中の点線）を示している。マグノン凝縮が起こる磁場を  $h_{c1}$ 、マグノンペアの凝縮が起こる磁場を  $h_{c2}$  と書くとき、磁場と励起エネルギーの関係は図 3.5 のようになっている。横軸が磁場、縦軸が磁気準粒子（マグノン、マグノンペア）の励起エネルギーである。 $h_{c2} - h_{c1}$  が大きいほど、広い磁場領域でマグノンペアがマグノンよりも安定に現れることが分かる。

ここで、パイロクロア格子の幾何学的な構造について述べておく。パイロクロア格子は四面体が頂点共有して 3 次元的に連なっている格子、あるいは 4 つの面心立方 (FCC) 格子によって構成される格子として理解できる (図 3.1)。また、(111) 面にはカゴメ格子が現れ (図 3.2)、[100] 方向に射影するとチェッカーボード格子が現れる (図 3.3) など、様々な特徴を持つ格子である。本論文ではパイロクロア格子の単位胞として図 3.7 を考える。したがって、基本並進ベクトル  $\mathbf{a}_i = 2\mathbf{e}_i$  ( $i = 1, 2, 3$ ) は FCC 格子のそれと等しい。ここで  $\mathbf{e}_i$  は

$$\mathbf{e}_1 = \frac{1}{\sqrt{2}}(1, 1, 0), \quad \mathbf{e}_2 = \frac{1}{\sqrt{2}}(0, 1, 1), \quad \mathbf{e}_3 = \frac{1}{\sqrt{2}}(1, 0, 1) \quad (3.2)$$

であり、最近接サイト間の距離を 1 としている。対応する逆格子ベクトル  $\mathbf{b}_i$  は

$$\mathbf{b}_1 = \frac{\pi}{\sqrt{2}}(1, 1, -1), \quad \mathbf{b}_2 = \frac{\pi}{\sqrt{2}}(-1, 1, 1), \quad \mathbf{b}_3 = \frac{\pi}{\sqrt{2}}(1, 1, 1) \quad (3.3)$$

と書け、その第 1 ブリルアンゾーンは図 3.6 のようになる。

ここで、摂動論的に DM 相互作用を導入した系を考える。Moriya's rule [44] から期待されるパイロク

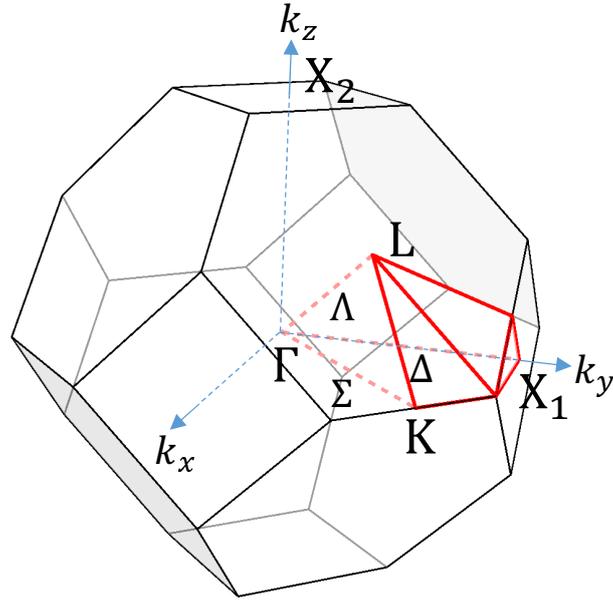


図 3.6 FCC 格子の第 1 ブリルアンゾーン。  $\Gamma = (0, 0, 0)$ ,  $X_1 = \frac{\pi}{\sqrt{2}}(0, 1, 0)$ ,  $X_2 = \frac{\pi}{\sqrt{2}}(0, 0, 1)$ ,  $K = \frac{3\pi}{4\sqrt{2}}(1, 1, 0)$ ,  $L = \frac{\pi}{2\sqrt{2}}(1, 1, 1)$  である。また、 $\Delta, \Sigma, \Lambda$  はそれぞれ点  $\Gamma$  と点  $X_1, K, L$  を結ぶ線分である。

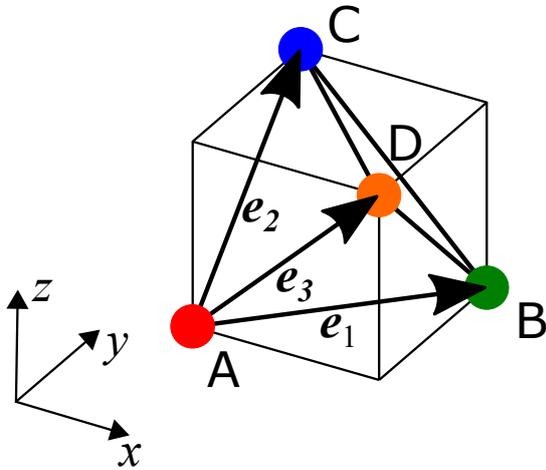


図 3.7 パイロクロア格子の単位胞。単位胞に含まれる 4 サイトがそれぞれ FCC 格子を形成する。

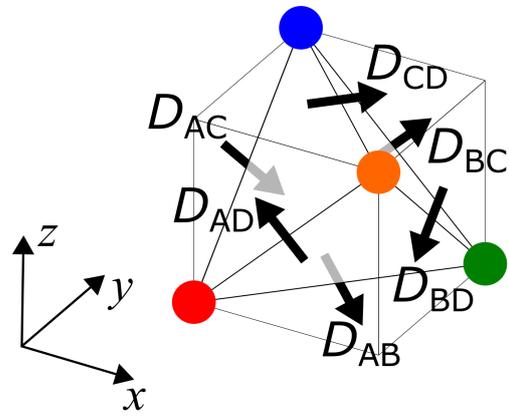


図 3.8 パイロクロア格子の DM ベクトル

ロア格子における DM ベクトルは

$$D_{AB} = \frac{D}{\sqrt{2}}(1, -1, 0), \quad D_{AC} = \frac{D}{\sqrt{2}}(0, 1, -1), \quad D_{AD} = \frac{D}{\sqrt{2}}(-1, 0, 1) \quad (3.4)$$

$$D_{BC} = \frac{D}{\sqrt{2}}(1, 0, 1), \quad D_{BD} = \frac{D}{\sqrt{2}}(0, -1, -1), \quad D_{CD} = \frac{D}{\sqrt{2}}(1, 1, 0) \quad (3.5)$$

である [50] (図 3.8)。この DM 相互作用を持つハミルトニアン

$$\mathcal{H} = \sum_{\langle i, j \rangle} \left[ J_1 \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + J_2 (\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j)^2 + D_{ij} \cdot (\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j) \right] - h \sum_i S_i^z \quad (3.6)$$

について、飽和磁場以上における飽和磁化状態でのマグノン励起、マグノンペア励起を考える。以下では実空間の  $z$  軸とスピン空間の  $z$  軸を一致させ、磁場方向を  $z$  軸とする。飽和磁化状態は

$$|\text{FP}\rangle \equiv \bigotimes_i \left| \frac{3}{2} \right\rangle_i \quad (3.7)$$

と書け、そのエネルギーは

$$E_0 = \frac{27}{4} N J_1 + \frac{243}{16} N J_2 - \frac{3}{2} N h \quad (3.8)$$

である\*1。ここで、 $N$  は全サイト数である。以下では、飽和磁化状態のエネルギー  $E_0$  を原点としてエネルギー固有値を計算し、マグノン、マグノンペアの分散関係を示す。

### 3.1.1 マグノン

マグノンが励起されると全スピン  $S_{\text{tot}}$  の  $z$  成分  $S_{\text{tot}}^z$  が 1 だけ小さくなり、 $S_{\text{tot}}^z = \frac{3}{2}N - 1$  ( $N$  は全サイト数) となる。したがってマグノン励起状態は  $S_i^- |\text{FP}\rangle$  の重ね合わせと考えることができる。ここでは波数  $\mathbf{k}$  のマグノンが 1 つ励起された状態を以下のように表す。

$$|\alpha(\mathbf{k})\rangle \equiv \frac{1}{\sqrt{3N_u}} \sum_{i \in \alpha} S_i^- e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} |\text{FP}\rangle \quad (3.13)$$

$$= \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \bigotimes_{j \neq i} \left| \frac{3}{2} \right\rangle_j \quad (3.14)$$

ここで、 $N_u$  は単位胞の数、 $N_u = N/4$  であり、 $\alpha$  ( $=A, B, C, D$ ) は副格子のインデックスである。 $|\alpha(\mathbf{k})\rangle$  は  $S_{\text{tot}}^z = \frac{3}{2}N - 1$  である部分空間における正規直交基底である。すなわち、系の固有状態はこれらの 4 つの基底の線形結合で  $\sum_{\alpha=A, B, C, D} \phi_{\alpha}^{(l)}(\mathbf{k}) |\alpha(\mathbf{k})\rangle$  のように表現でき、飽和磁化状態のエネルギー  $E_0$ 、飽和磁化状態にマグノンを 1 つ励起するエネルギー  $E_1^{(l)}$  ( $l=1, 2, 3, 4$ ) を用いてシュレディンガー方程式が以下のように書ける。

$$\mathcal{H} \sum_{\alpha=A, B, C, D} \phi_{\alpha}^{(l)}(\mathbf{k}) |\alpha(\mathbf{k})\rangle = (E_0 + E_1^{(l)}(\mathbf{k})) \sum_{\alpha=A, B, C, D} \phi_{\alpha}^{(l)}(\mathbf{k}) |\alpha(\mathbf{k})\rangle \quad (3.15)$$

\*1 飽和磁化状態のエネルギー固有値は以下の計算によって得られる。

$$\mathcal{H} |\text{FP}\rangle = \left\{ \sum_{\langle i, j \rangle} \left[ J_1 \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + J_2 (\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j)^2 + D_{ij} \cdot (\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j) \right] - h \sum_i S_i^z \right\} |\text{FP}\rangle \quad (3.9)$$

$$= \left\{ \sum_{\langle i, j \rangle} \left[ J_1 S_i^z S_j^z + J_2 (S_i^z S_j^z)^2 + D_{ij}^x (S_i^y S_j^z - S_i^z S_j^y) + D_{ij}^y (S_i^z S_j^x - S_i^x S_j^z) \right] - h \sum_i S_i^z \right\} |\text{FP}\rangle \quad (3.10)$$

$$= \left( J_1 \frac{9}{4} \frac{6N}{2} + J_2 \frac{81}{16} \frac{6N}{2} - h \frac{3}{2} N \right) |\text{FP}\rangle \quad (3.11)$$

$$= \left( J_1 \frac{27}{4} N + J_2 \frac{243}{16} N - h \frac{3}{2} N \right) |\text{FP}\rangle \equiv E_0 |\text{FP}\rangle \quad (3.12)$$

左から  $\langle \beta(\mathbf{k}) |$  を作用させると、

$$\sum_{\alpha=A,B,C,D} \langle \beta(\mathbf{k}) | \mathcal{H} | \alpha(\mathbf{k}) \rangle \phi_{\alpha}^{(l)}(\mathbf{k}) = (E_0 + E_1^{(l)}(\mathbf{k})) \phi_{\beta}^{(l)}(\mathbf{k}) \quad (3.16)$$

となり、行列  $(\langle \beta(\mathbf{k}) | \mathcal{H} | \alpha(\mathbf{k}) \rangle - E_0 \delta_{\alpha\beta})$  の対角化を行うことで、固有状態  $\{\phi_{\alpha}^{(l)}(\mathbf{k})\}$  と固有エネルギー  $E_1^{(l)}(\mathbf{k})$  が得られる。ハミルトニアン of 行列要素は以下のように書ける (詳細は付録 C)。

$$\langle \beta(\mathbf{k}) | \mathcal{H} | \alpha(\mathbf{k}) \rangle = \begin{cases} (3J_1 + \frac{9}{2}J_2 - 3iD_{\beta\alpha}^z) \cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}_{\alpha\beta}) & \alpha \neq \beta \\ E_0 - 9J_1 - \frac{27}{2}J_2 + h & \alpha = \beta \end{cases} \quad (3.17)$$

行列 (3.17) を対角化して得られる分散関係を図 3.9 に示す。ここでは第 1 ブリルアンゾーン (図 3.6) のうち、 $\Delta, \Sigma, \Lambda$  線上の分散関係を示す。図 3.9(a) は DM 相互作用がないときの分散関係で、 $J_2/J_1 = -0.2$ ,  $D/J_1 = 0$ ,  $h/J_1 = h_{c1}/J_1 + 1$  である。図 3.9(b) は磁場方向の  $U(1)$  対称性を保つ DM 相互作用を導入した場合の分散関係で、 $J_2/J_1 = -0.2$ ,  $D/J_1 = 0.3$ ,  $h/J_1 = h_{c1}/J_1 + 1$  である。ハミルトニアンが  $\mathbf{k} \rightarrow -\mathbf{k}$  について対称であるため、分散関係も同様の対称性を持つ。また、磁場に加えて DM 相互作用が導入されたことにより  $z$  方向の分散関係は異方的になっている。

図 3.9(a) にはフラストレート磁性体でしばしば現れるマグノン局在状態に対応するフラットバンドが現れている [51, 52]。マグノン局在状態では、格子の幾何学的性質によりマグノンホッピングの打ち消しあいが生じ、格子上のあるループにマグノンが局在する。

DM 相互作用を導入した場合の分散関係に現れるレベル交差とワイル点について述べる。まず、DM 相互作用を導入すると、フラットバンドの縮退がとけ分散を持つようになる。前述したホッピングの打ち消しあいが DM 相互作用によって妨げられるからである。しかしながら、同一  $k_z$  面内にある  $X_1$  点と  $X_2$  点を結ぶ線上ではレベル交差が生じ、常に 2 重縮退が残る。この縮退線はパイロクロア格子の幾何学的性質によるもので、 $\overline{X_1 X_2}$  線上ではハミルトニアンの対称性が高くなる。例として  $k_z=0$  面を採り上げる。 $k_z=0$  面では、 $(k_x, k_y) = (0, \pi/\sqrt{2}) + \mathbf{G}$ ,  $(\pi/\sqrt{2}, 0) + \mathbf{G}$  に  $X_1$  点、 $(k_x, k_y) = (\pi/\sqrt{2}, \pi/\sqrt{2}) + \mathbf{G}$  (複合任意) に  $X_2$  点がある。ここでの  $\mathbf{G}$  は  $k_z=0$  面内にある逆格子ベクトルを意味する。 $\overline{X_1 X_2}$  線として、例えば  $k_y = \pi/\sqrt{2}$  の直線を見ると、ハミルトニアンは

$$\begin{pmatrix} A_- & B \\ B^\dagger & A_+ \end{pmatrix} \quad (3.18)$$

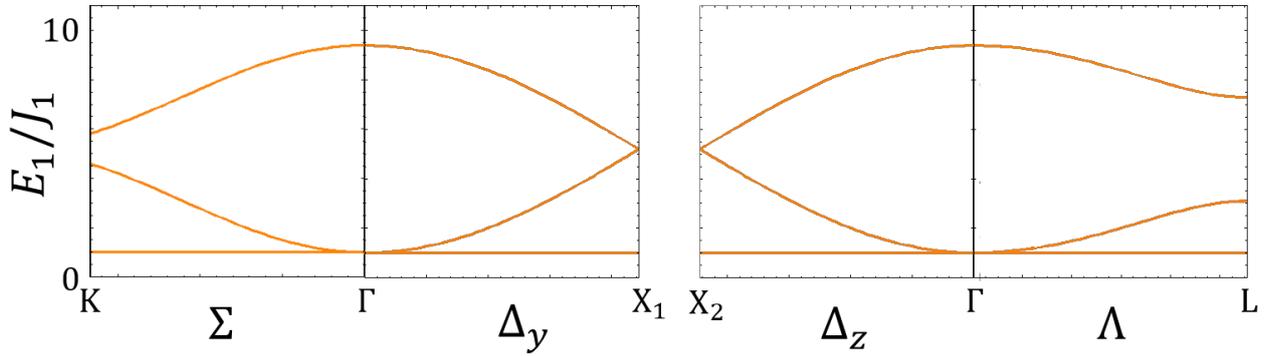
と書ける。ここで、 $A_{\pm}, B$  は  $2 \times 2$  の行列で、 $\tilde{J} = 2J_1 + 3J_2$  として

$$A_{\pm} = \begin{pmatrix} h - \frac{9}{2}\tilde{J} & \pm \frac{3}{2}\tilde{J} \sin\left[\frac{k_x}{\sqrt{2}}\right] \\ \pm \frac{3}{2}\tilde{J} \sin\left[\frac{k_x}{\sqrt{2}}\right] & h - \frac{9}{2}\tilde{J} \end{pmatrix}, \quad B = \begin{pmatrix} 0 & \left(-\frac{3}{\sqrt{2}}iD + \frac{3}{2}\tilde{J}\right) \cos\left[\frac{k_x}{\sqrt{2}}\right] \\ \left(-\frac{3}{\sqrt{2}}iD + \frac{3}{2}\tilde{J}\right) \cos\left[\frac{k_x}{\sqrt{2}}\right] & 0 \end{pmatrix} \quad (3.19)$$

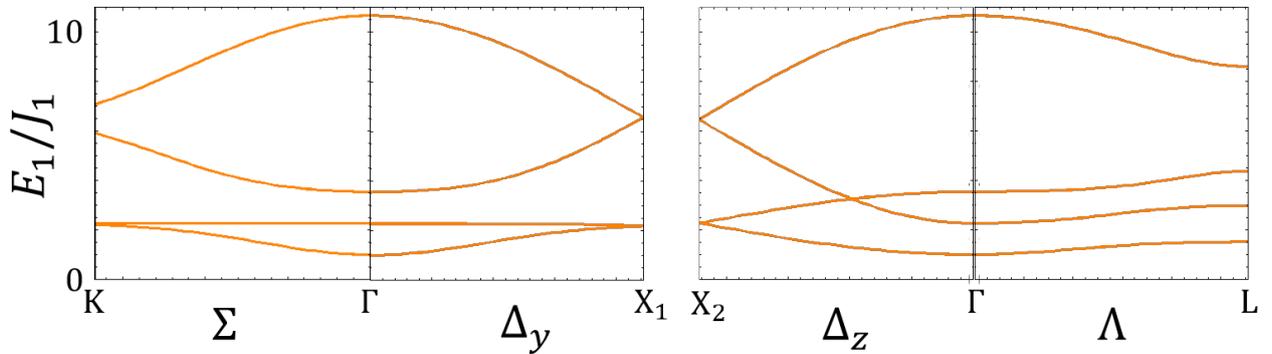
と書ける。このハミルトニアンのエネルギー固有値を数式処理システム *Mathematica* を用いて計算すると

$$h - \frac{9}{2}\tilde{J} \pm \frac{3}{2} \sqrt{D^2 (1 + \cos[\sqrt{2}k_x]) + \tilde{J}^2} \quad (3.20)$$

となり、これらがそれぞれ 2 重縮退している。またエネルギー固有値の表式から分かるように、波数が  $(\pi/\sqrt{2}, \pi/\sqrt{2})$  である  $X_2$  点でのエネルギー固有値は DM 相互作用に依存しない。次にワイル点について



(a) DM 相互作用がないときのマグノンの分散関係。第1,2バンドはフラットバンドで2重縮退している。



(b) DM 相互作用があるときのマグノンの分散関係。縮退が解け、フラットバンドが分散を持つバンドになる。

図 3.9 マグノンの分散関係。縦軸は飽和磁化状態におけるマグノン励起エネルギー  $E_1(k_x, k_y, k_z)$ , 横軸は波数である。第1ブリルアンゾーン (図 3.6) 内で特に対称性の高い点  $\Gamma, X_1, X_2, K, L$  を選び、左図は  $K\text{-}\Gamma\text{-}X_1$  を結ぶ線分上、右図は  $X_2\text{-}\Gamma\text{-}L$  を結ぶ線分上での分散関係を示す。 $X_1, X_2$  はそれぞれ  $y$  軸、 $z$  軸上の点である。各パラメータは (a)  $J_2/J_1 = -0.2, D/J_1 = 0, h/J_1 = h_{c1}/J_1 + 1$ , (b)  $J_2/J_1 = -0.2, D/J_1 = 0.3, h/J_1 = h_{c1}/J_1 + 1$  である。

触れる。DM を導入した場合の  $\Delta_z$  線上の分散関係を見ると、マグノン第2バンドと第3バンドが交差している。この点における縮退は、上述の縮退線と異なり、ワイル点になっている。すなわち波数をワイル点からずらすと必ずギャップが開く。 $k_z$  方向のエネルギー固有値を見ると、

$$\left\{ h - 3\tilde{J} \pm 3\tilde{J} \cos \left[ \frac{k_z}{\sqrt{2}} \right], h - 6\tilde{J} \pm 3 \sqrt{D^2 \left( 1 + \cos \left[ \sqrt{2}k_z \right] \right)} \right\} \quad (3.21)$$

であり、ワイル点の座標を  $(0, 0, \pm k_z^{\text{Weyl}})$  ( $k_z^{\text{Weyl}} > 0$ ) と書くと、

$$h - 3\tilde{J} - 3\tilde{J} \cos \left[ \frac{k_z^{\text{Weyl}}}{\sqrt{2}} \right] = h - 6\tilde{J} + 3 \sqrt{D^2 \left( 1 + \cos \left[ \sqrt{2}k_z^{\text{Weyl}} \right] \right)} \quad (3.22)$$

となる。すなわち、 $D = 0$  のときに原点に現れていた3重縮退は完全には解けず、DM 相互作用によって  $k_z$  軸上のある波数  $\pm k_z^{\text{Weyl}}$  に縮退を残す。

最後にマグノンの凝縮が起こる臨界磁場について述べる。DM 相互作用がない場合、第1バンド（最も低いエネルギーを持つバンド）は2重縮退したフラットバンドである。DM 相互作用を導入すると、その縮退が解けフラットバンドは分散を持つ。このときエネルギー最小値は  $\mathbf{k} = 0$  にある。このエネルギー最小値が0になる磁場を臨界磁場  $h_{c1}$  とする。 $\mathbf{k} = 0$  における、エネルギー固有値は

$$\{h, h - 12J_1 - 18J_2, h - 12J_1 - 18J_2 \pm 3\sqrt{2}D\} \quad (3.23)$$

であるので、 $\tilde{J} = 2J_1 + 3J_2$  と書くとき、臨界磁場は相互作用の大きさに応じて以下のように書かれる（図3.10）。

$$h_{c1} = \begin{cases} 6\tilde{J} + 3\sqrt{2}D \equiv h_{c1}^+ & ; D \geq 0 \text{ かつ } D \geq \sqrt{2}\tilde{J} \\ 0 & ; -\sqrt{2}\tilde{J} < D < \sqrt{2}\tilde{J} \\ 6\tilde{J} - 3\sqrt{2}D \equiv h_{c1}^- & ; D < 0 \text{ かつ } D \leq -\sqrt{2}\tilde{J} \end{cases} \quad (3.24)$$

$h_{c1} = 0$  のとき、この系では自発的対称性の破れが起こり、ゼロ磁場で全てのスピンの向きが揃っている。 $h_{c1} = h_{c1}^\pm$  のとき、DM 相互作用のスピンをひねる（2つのスピンの向きが平行にならないようにする）効果によりマグノン励起エネルギーが下がり、有限の DM 相互作用によって臨界磁場は大きくなる。

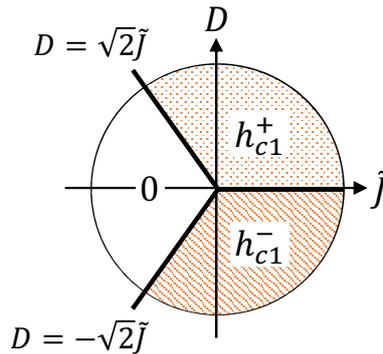


図3.10 マグノンの臨界磁場  $h_{c1}$  と相互作用  $\tilde{J} = 2J_1 + 3J_2$ , DM 相互作用  $D$  の関係。臨界磁場が0となる領域は強磁性相であり、磁場中でマグノンは常にギャップを持つ。臨界磁場  $h_{c1}^+ = 6\tilde{J} + 3\sqrt{2}D$  の領域では、磁場が  $h_{c1}^+$  と等しくなるときマグノン凝縮が起きる。 $\tilde{J}$  を固定すると、有限の DM 相互作用によって臨界磁場が大きくなる。

### 3.1.2 マグノンペア

ここでは、2つのマグノンが束縛状態を形成したマグノンペアについて解析する。双2次相互作用は有効的にマグノン間引力の働きをして、格子上を運動できるマグノンペアを形成する。マグノン局在状態と異なり、格子上を運動できるマグノンペアは飽和磁場近傍でマグノンよりもエネルギーが低くなることがある。したがって、マグノン局在状態が現れる系ではしばしばマグノンペアがよい磁気準粒子となり、ここで考えるモデルにおいてもマグノンペアがよい磁気準粒子となる相互作用領域がある。

飽和磁化状態において、マグノンペアが1つ生成された場合は  $S_{\text{tot}}^z = \frac{3}{2}N - 2$  で、マグノン1つが存在する場合は  $S_{\text{tot}}^z = \frac{3}{2}N - 1$  である。したがって、 $S_{\text{tot}}^z$  が保存する系ではマグノンペアとマグノンは異なる

ヒルベルト空間に独立に住んでいるので、独立のエネルギー固有値問題を考えることができる。マグノンペアを含むマグノンが2つ励起された状態 ( $S_{\text{tot}}^z = \frac{3}{2}N - 2$ ) は、例えば

$$e^{ik_1 \cdot r_i} S_i^- e^{ik_2 \cdot r_j} S_j^- |\text{FP}\rangle \quad (3.25)$$

のように書ける。これは波数  $\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2$  を持つマグノンがサイト  $i, j$  に励起された状態である。ここで、重心運動量  $\mathbf{k} = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2$ , 相対運動量  $\mathbf{q} = (\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2)/2$ , 重心座標  $\mathbf{R} = (\mathbf{r}_i + \mathbf{r}_j)/2$ , 相対座標  $\mathbf{r} = \mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j$  を導入する。これらを用いると  $\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}_i + \mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r}_j = \mathbf{k} \cdot \mathbf{R} + \mathbf{q} \cdot \mathbf{r}$  と書ける。2つのマグノンが励起されたときの厳密なバンド構造を出すには、あらゆる可能なペアの配置を全て考慮する必要がある。しかしながら、この系におけるスピン間相互作用は非常に短距離であり、マグノン間引力も短距離力となるため、マグノンペアの相対運動量がゼロであり、かつ、実空間で近接するサイト上にある束縛状態を仮定してマグノンペアのバンド構造を解析する。このように、マグノンペアが住む  $S_{\text{tot}}^z = \frac{3}{2}N - 2$  のヒルベルト空間の中で、2つのマグノンが近距離にいる部分空間だけ取り出した場合、少なくとも低エネルギーのマグノンペアは定量的に正しく求められることが期待される。実際、離れたサイト上にあるマグノンペア状態の寄与が  $J_2$  によって非常に小さくなるのが厳密計算<sup>\*2</sup>から確かめられている [46]。すなわち厳密な飽和磁場（臨界磁場）とこの変分計算による飽和磁場が、あるパラメータの範囲内で非常に近い値を持つ。したがって、以下では  $S_{\text{tot}}^z = \frac{3}{2}N - 2$  のヒルベルト空間の中で、2つのマグノンが近接するサイト上にある部分空間内で変分法的にマグノンペアの固有状態を求める。

ここでは変分計算が信頼できる  $J_2/J_1 = -0.2$  に固定し、マグノンペア状態として、2つのマグノンがサイト上に束縛されたものと最近接サイト上に束縛されたもののみを考える。

$$|\alpha\alpha(\mathbf{k})\rangle \equiv \frac{1}{2\sqrt{3N_u}} \sum_{i \in \alpha} (S_i^-)^2 e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} |\text{FP}\rangle \quad (3.26)$$

$$= \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle_i \otimes \left| \frac{3}{2} \right\rangle_j \quad (3.27)$$

$$|\alpha\beta^\pm(\mathbf{k})\rangle \equiv \frac{1}{3\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} S_i^- S_{i \pm \delta_{\alpha\beta}}^- e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_i \pm \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2})} |\text{FP}\rangle \quad (3.28)$$

$$= \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_i \pm \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2})} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\beta}} \otimes \left| \frac{3}{2} \right\rangle_{\text{else}} \quad (3.29)$$

状態 (3.26) は2つのマグノンが1つのサイト上に励起された状態、状態 (3.28) は2つのマグノンが隣接するサイト上に励起された状態を表している（以下では  $|\alpha\alpha\rangle$  をサイト型の基底、 $|\alpha\beta^\pm\rangle$  をボンド型の基底と呼ぶ）。また、 $|\alpha\beta^\pm(\mathbf{k})\rangle = |\beta\alpha^\pm(\mathbf{k})\rangle$  となるため、ボンド型の基底は次の12個である。独立した基底を書き下すと、 $\{|\alpha\beta^\pm(\mathbf{k})\rangle\} = \{|\text{AB}^\pm(\mathbf{k})\rangle, |\text{AC}^\pm(\mathbf{k})\rangle, |\text{AD}^\pm(\mathbf{k})\rangle, |\text{BC}^\pm(\mathbf{k})\rangle, |\text{BD}^\pm(\mathbf{k})\rangle, |\text{CD}^\pm(\mathbf{k})\rangle\}$  となる。また、 $i \in \alpha$  であるとき、 $i$  と  $i + \delta_{\alpha\beta}$  は同じ単位胞内にあり、 $i$  と  $i - \delta_{\alpha\beta}$  は隣接する単位胞の最近接サイトとな

<sup>\*2</sup> ここで指す厳密計算は、マグノンの2体問題をグリーン関数法を用いて解くということである。マグノンペアが低エネルギー励起状態として存在する場合、分散関係を描くと、マグノン束縛状態が低エネルギーに現れ、高エネルギー側にマグノンの散乱状態に対応する continuum が現れる。このようにマグノンの2体問題を厳密に取り扱って得られるマグノン束縛状態には、2つのマグノンが離れたサイト上に励起された状態も含まれる。しかしながら、 $|J_2|$  が大きくなるにつれ、その離れたサイト上のマグノンペアの寄与は小さくなる。本研究ではそのような  $J_2$  領域で、近接サイト上に励起されたマグノンペアのみを取り扱う。

る。ゆえに  $|\alpha\beta^+(\mathbf{k})\rangle$  と  $|\alpha\beta^-(\mathbf{k})\rangle$  は同じボンド型でも、それぞれ同一単位胞内と隣接する単位胞にマグノンペアが励起された状態である。マグノンペア状態 (3.26), (3.28) を見てわかるように、2つのマグノンペアの存在位置が重なってしまう場合、マグノンペア演算子間の交換関係がボゾンの交換関係からずれる\*3。ただし、低温領域におけるマグノンペアの希薄ガスではペアの重なるの効果は無視できるため、次章で行う熱ホール伝導度の計算において我々はマグノンペアを単純なボーズ粒子として扱う。

あるマグノンペアの励起状態は状態 (3.26), (3.28) の線形結合で  $\sum_{(\alpha,\beta)} \psi_{\alpha\beta}(\mathbf{k}) |\alpha\beta(\mathbf{k})\rangle$  と書ける。マグノンペアの励起エネルギーを  $E_2^{(l)}(\mathbf{k})$  ( $l = 1, 2, \dots, 16$ ) と書くと、制限されたヒルベルト空間における「固有方程式」は

$$\sum_{\alpha,\beta} \langle \gamma\delta(\mathbf{k}) | (\mathcal{H} - E_0) | \alpha\beta(\mathbf{k}) \rangle \psi_{\alpha\beta}^{(l)}(\mathbf{k}) = E_2^{(l)}(\mathbf{k}) \psi_{\gamma\delta}^{(l)}(\mathbf{k}) \quad (3.30)$$

となる。16×16の行列 ( $\langle \gamma\delta(\mathbf{k}) | (\mathcal{H} - E_0) | \alpha\beta(\mathbf{k}) \rangle$ ) を対角化することで励起エネルギー  $E_2^{(l)}(\mathbf{k})$ , 固有ベクトル  $\{\psi_{\alpha\beta}^{(l)}(\mathbf{k})\}$  が得られる。具体的な計算は付録Dに示し、ここには結果のみを示す。

$$\langle \alpha\alpha(\mathbf{k}) | \mathcal{H} | \alpha\alpha(\mathbf{k}) \rangle = J_1 \left( \frac{27}{4}N - 18 \right) + J_2 \left( \frac{243}{16}N - 9 \right) - h \left( \frac{3}{2}N - 2 \right) \quad (3.31)$$

$$= E_0 - 18J_1 - 9J_2 + 2h \quad (3.32)$$

$$\langle \beta\beta(\mathbf{k}) | \mathcal{H} | \alpha\alpha(\mathbf{k}) \rangle = 6J_2 \cos(\mathbf{k} \cdot \delta_{\alpha\beta}) \quad (3.33)$$

$$\langle \alpha\beta^+(\mathbf{k}) | \mathcal{H} | \alpha\alpha(\mathbf{k}) \rangle = \left( \sqrt{3}J_1 - \frac{\sqrt{3}}{2}J_2 + \sqrt{3}iD_{\alpha\beta}^z \right) e^{\mp i\mathbf{k} \cdot \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}} \quad (3.34)$$

$$\langle \alpha\beta^\pm(\mathbf{k}) | \mathcal{H} | \alpha\beta^\pm(\mathbf{k}) \rangle = J_1 \left( \frac{27}{4}N - 17 \right) + J_2 \left( \frac{243}{16}N - \frac{43}{2} \right) - h \left( \frac{3}{2}N - 2 \right) \quad (3.35)$$

$$= E_0 - 17J_1 - \frac{43}{2}J_2 + 2h \quad (3.36)$$

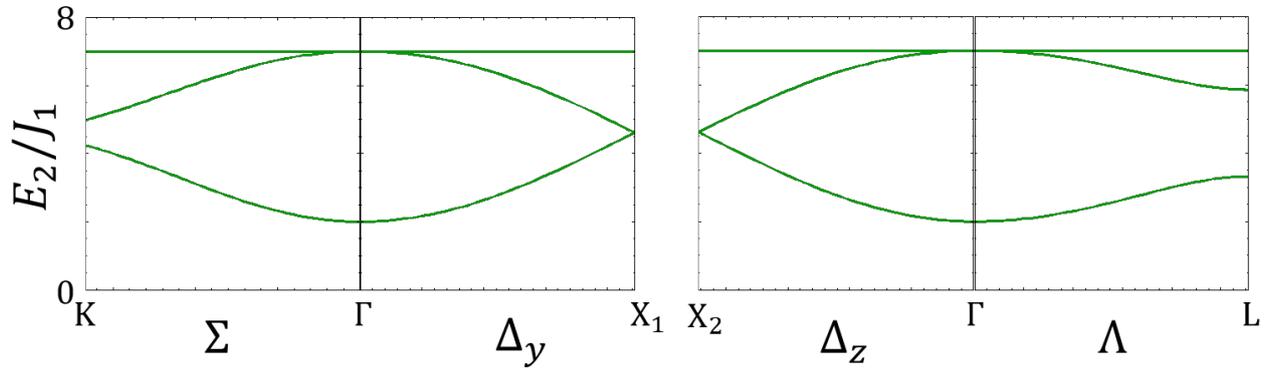
$$\langle \alpha\gamma^\pm(\mathbf{k}) | \mathcal{H} | \alpha\beta^\pm(\mathbf{k}) \rangle = \left( \frac{3}{2}J_1 + \frac{9}{4}J_2 - i\frac{3}{2}D_{\gamma\beta}^z \right) e^{\mp i\mathbf{k} \cdot \frac{\delta_{\beta\gamma}}{2}} \quad (3.37)$$

$\alpha, \beta, \gamma$  は互いに異なり、このほかの行列要素は0である。この行列を対角化すると、最大16本のバンドを持つマグノンペアの分散関係  $E_2^{(l)}(\mathbf{k})$  が得られる。図3.11は、 $\Delta, \Sigma, \Lambda$  線上の分散関係のうち、低エネルギー領域の分散関係である。相互作用は  $J_2/J_1 = -0.2, h/J_1 = h_{c2}/J_1 + 1$  とし、図3.11(a)は  $D/J_1 = 0$ , 図3.11(b)は  $D/J_1 = 0.3$  である。DM相互作用の有無にかかわらず、マグノンペアの第1バンドは  $\mathbf{k} = 0$  に最小値を持ち縮退はない\*4。また、マグノンと同様、磁場とDM相互作用により  $z$  軸方向が異方的になっている。さらに、マグノンペアの低エネルギー側の4本のバンドをマグノンのバンドと比較すると、ちょうどエネルギー順序を反転させた形になっていることが分かる。すなわち、マグノンペアバンドにも  $\overline{X_1X_2}$  上の縮退線や  $k_z$  軸上のワイル点が現れている。

最後にマグノンペアの臨界磁場  $h_{c2}$  に言及する。固有エネルギー  $E_2^{(l)}(\mathbf{k})$  に関して、一般の波数  $\mathbf{k}$  や相互作用に対する表式を得ることは困難であるが、ある関数  $f(J_1, J_2, \mathbf{k})$  を用いて  $E_2^{(l)}(\mathbf{k}) = f^{(l)}(J_1, J_2, \mathbf{k}) + 2h$

\*3 例えば状態  $|\mathbf{AB}\rangle, |\mathbf{AC}\rangle$  を生成・消滅するマグノンペア演算子  $c_{\mathbf{AB}}^\dagger, c_{\mathbf{AB}}, c_{\mathbf{AC}}^\dagger, c_{\mathbf{AC}}$  を考えると、サイト  $i \in \mathbf{A}$  にマグノンを生成する演算子間には非可換であるために、マグノンペアの演算子間の交換関係がボゾンの交換関係からずれる。

\*4 マグノンと同様の理由で、DM相互作用の有無にかかわらず点  $X_1, X_2$  には縮退がある。



(a) DM 相互作用がないときのマグノンペアの分散関係。波数 0 にエネルギー最小点がある。

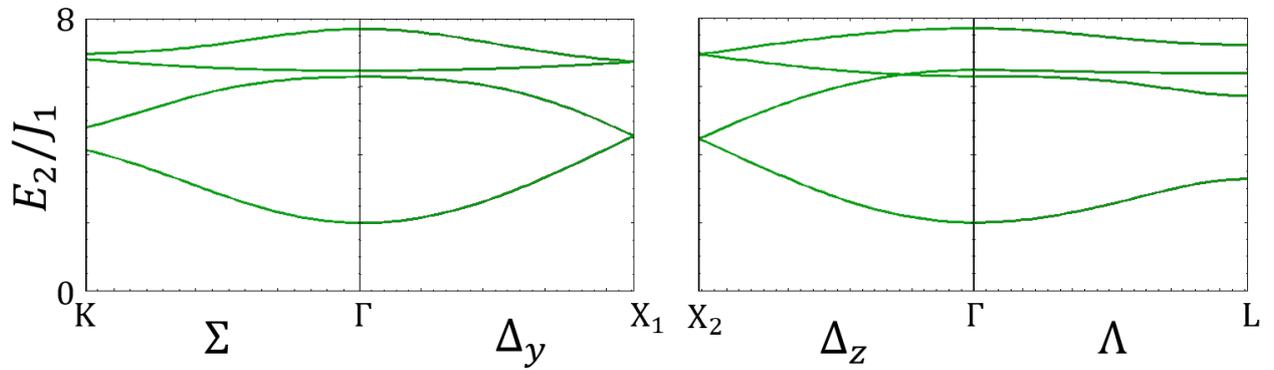
(b) DM 相互作用があるときのマグノンペアの分散関係。 $k_z$  方向に異方的になる。

図 3.11 マグノンペアの分散関係。縦軸は飽和磁化状態におけるマグノンペア励起エネルギー  $E_2(k_x, k_y, k_z)$ 、横軸は波数である。第 1 ブリルアンゾーン (図 3.6) 内で特に対称性の高い点  $\Gamma, X_1, X_2, K, L$  を選び、左図は  $K\text{-}\Gamma\text{-}X_1$  を結ぶ線分上、右図は  $X_2\text{-}\Gamma\text{-}L$  を結ぶ線分上での分散関係を示す。 $X_1, X_2$  はそれぞれ  $y$  軸、 $z$  軸上の点である。各パラメータは (a)  $J_2/J_1 = -0.2, D/J_1 = 0, h/J_1 = h_{c2}/J_1 + 1$ , (b)  $J_2/J_1 = -0.2, D/J_1 = 0.3, h/J_1 = h_{c2}/J_1 + 1$  である。

と書くことができる。マグノンと同様、第 1 バンドがギャップレスとなる磁場を臨界磁場とすると、

$$h_{c2} = -\frac{1}{2} \min [f^{(l)}(J_1, J_2, \mathbf{k} = 0)] \quad (3.38)$$

となる。数値対角化により求めたマグノンとマグノンペアの臨界磁場の DM 相互作用依存性を図 3.12 に示した。マグノンペアの最低エネルギーは DM 相互作用に依存しないことが分かる。これは変分計算による効果と考えられ、より離れたサイト上に 2 つのマグノンが励起された状態まで取り込むと、臨界磁場  $h_{c2}$  は DM 相互作用に依存し得る。

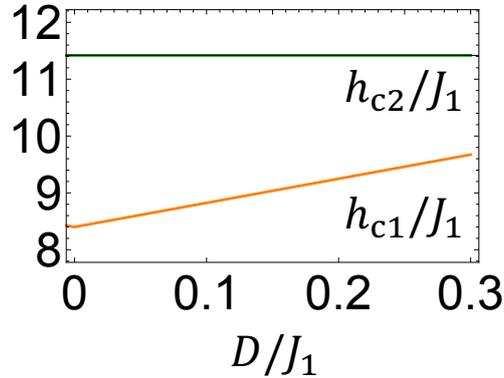


図 3.12 DM 相互作用に対する臨界磁場の変化 ( $J_2/J_1 = -0.2$  とした)。縦軸を磁場として、橙線と緑線はそれぞれマグノンの臨界磁場  $h_{c1}$ 、マグノンペアの臨界磁場  $h_{c2}$  を示す。磁場を下げて  $h_{c1}$  と  $h_{c2}$  に到達すると、それぞれマグノンとマグノンペアの凝縮が起こる。また、マグノンペアの臨界磁場は DM 相互作用の大きさによらず一定であることが分かる。

### 3.1.3 マグノンとマグノンペアの混成

マグノンとマグノンペアの演算子を  $b, c$  と書くと、ここまで考えてきたマグノンとマグノンペアのハミルトニアンは以下のように表現できる。

$$\mathcal{H}^{\text{magnon}} = \sum_{\mathbf{k}} \sum_{i, j=1, \dots, 4} b_i^\dagger(\mathbf{k}) \mathcal{M}_{ij}^{\text{magnon}}(\mathbf{k}) b_j(\mathbf{k}) \quad (3.39)$$

$$\mathcal{H}^{\text{paired-magnon}} = \sum_{\mathbf{k}} \sum_{i, j=1, \dots, 16} c_i^\dagger(\mathbf{k}) \mathcal{M}_{ij}^{\text{paired-magnon}}(\mathbf{k}) c_j(\mathbf{k}) \quad (3.40)$$

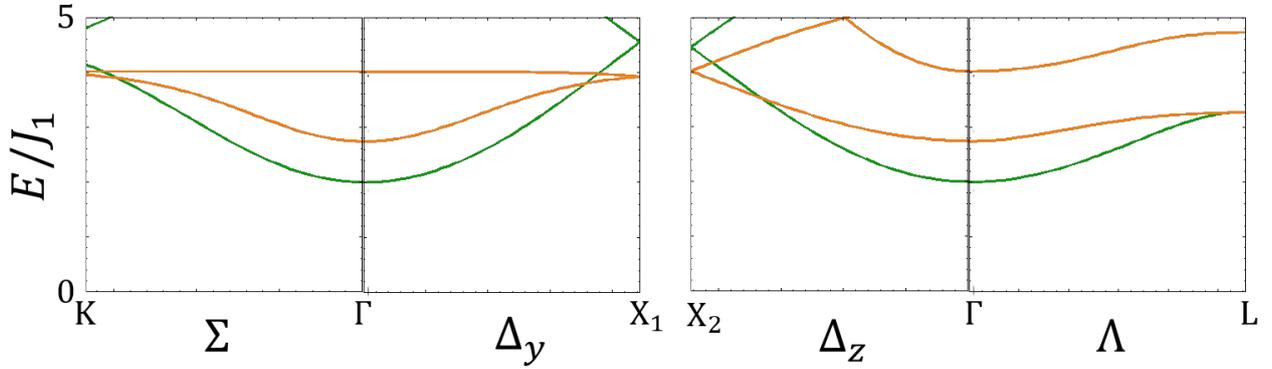
$i, j$  は、マグノンの場合は単位胞内の内部自由度のインデックスで、マグノンペアの場合は変分計算で取り入れた 16 種類の基底を指す。図 3.9, 図 3.11 はそれぞれ  $\mathcal{M}_{ij}^{\text{magnon}}$ ,  $\mathcal{M}_{ij}^{\text{paired-magnon}}$  を対角化して得られた分散関係である。これらの結果を重ねると、図 3.13(a) のようになり、飽和磁場近傍では互いの低エネルギーバンドが交差する点がある。

本節では、磁場を印加した方向の  $U(1)$  対称性を破る DM 相互作用の効果を考える。マグノンとマグノンペアの演算子をそれぞれ  $b^\dagger = (b_1^\dagger, b_2^\dagger, b_3^\dagger, b_4^\dagger)$ ,  $c^\dagger = (c_1^\dagger, c_2^\dagger, \dots, c_{16}^\dagger)$  と書くと、マグノンとマグノンペアが混在する系におけるハミルトニアンを以下のように書くことができる。

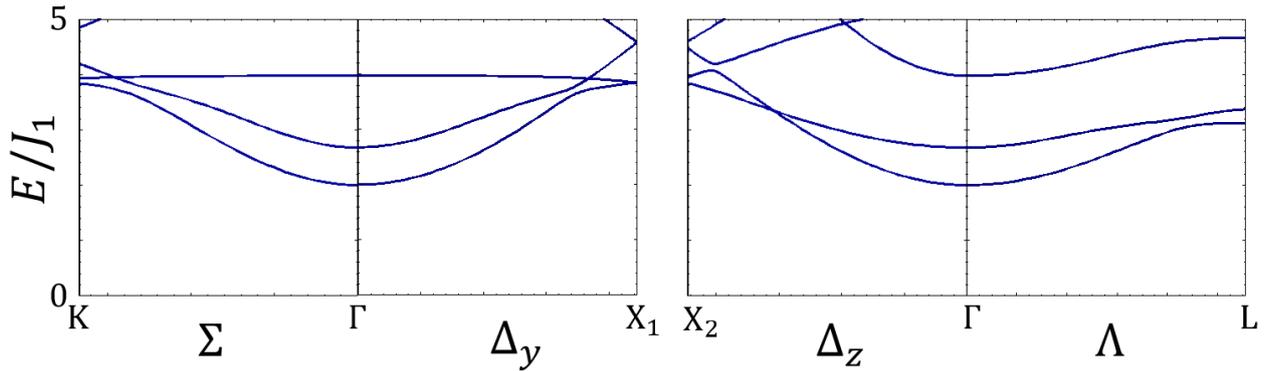
$$\mathcal{H}^{\text{hybrid}} = \sum_{\mathbf{k}} \sum_{i, j=1, \dots, 4} \begin{pmatrix} b^\dagger(\mathbf{k}) & c^\dagger(\mathbf{k}) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathcal{M}_{ij}^{\text{magnon}}(\mathbf{k}) & \mathcal{M}^{\text{hybrid}}(\mathbf{k}) \\ (\mathcal{M}^{\text{hybrid}})^\dagger(\mathbf{k}) & \mathcal{M}^{\text{paired-magnon}}(\mathbf{k}) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} b(\mathbf{k}) \\ c(\mathbf{k}) \end{pmatrix} \quad (3.41)$$

$\mathcal{M}^{\text{hybrid}}(\mathbf{k})$  はマグノンとマグノンペアの混成状態をもたらす非対角ブロック行列 (付録 E) であり、一般に DM 相互作用のある系で現れる。この  $20 \times 20$  行列を対角化して得られる分散関係を図 3.13(b) に示す。図 3.13(a) で交差していたバンド間にギャップが開く (レベル反発) 様子を見ることができる。一般にレベル反発が起きた波数近傍では、2つのバンドは逆符号に大きなベリー曲率を獲得する。本モデルにおいても同様であり、第 4 章で、レベル反発によってバンドが大きなベリー曲率を獲得することを図示する。

また、図 3.13(b) から、マグノンバンドとマグノンペアバンドによるレベル交差が新たに現れることも見て取れる。



(a) マグノンとマグノンペアの混成を起こす非対角ブロック行列  $\mathcal{M}^{\text{hybrid}}$  の寄与を無視したときの分散関係。橙線と緑線はそれぞれマグノンとマグノンペアの分散関係と一致する。



(b) 混成されたマグノンとマグノンペアの分散関係。マグノンバンドとマグノンペアバンドの交差点においてレベル反発が見られる。各バンドの状態はマグノンとマグノンペアの混成状態として書かれる。

図 3.13 マグノンとマグノンペアが共存する場合の分散関係。飽和磁化状態において、マグノンとマグノンペアが混成された状態で励起されるとき励起エネルギー  $E(k_x, k_y, k_z)$  を、第 1 ブリルアンゾーン (図 3.6) 内で特に対称性の高い点  $\Gamma, X_1, X_2, K, L$  を選び、左図は  $K\text{-}\Gamma\text{-}X_1$  を結ぶ線分上、右図は  $X_2\text{-}\Gamma\text{-}L$  を結ぶ線分上での分散関係を示す。 $X_1, X_2$  はそれぞれ  $y$  軸、 $z$  軸上の点である。各パラメータは  $J_2/J_1 = -0.2, D/J_1 = 0.3, h/J_1 = h_2/J_1 + 1$  である。

### 3.2 弱く結合した $S = 1/2$ フラストレート zigzag スピン鎖

本節では、まず  $S = 1/2$  フラストレート zigzag スピン鎖について先行研究をレビューし、本研究で取り扱う DM 相互作用を考慮した  $S = 1/2$  フラストレート zigzag スピン鎖が弱く結合した 2 次元磁性体のモデルの詳細を説明する。続いて、3.2.1 節と 3.2.2 節では  $S^z$  軸周りの  $U(1)$  対称性を壊す DM 相互作用が存在しない場合のマグノンとマグノンペアの分散関係を解析する。最後に、3.2.3 節で  $U(1)$  対称性を破

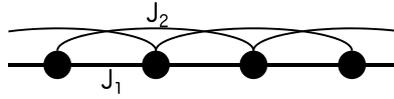


図 3.14  $S = 1/2$  フラストレート zigzag スピン鎖。この系は最近接サイトに強磁性交換相互作用  $J_1$  (太線) と次近接サイトに反強磁性交換相互作用  $J_2$  (細線) をもち、これらの相互作用が競合するフラストレート系である。

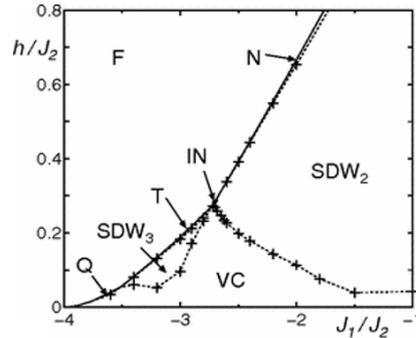


図 3.15  $S = 1/2$  フラストレート zigzag スピン鎖の磁場中相図 [38]。N と SDW<sub>2</sub> ではネマティック準長距離秩序、T と SDW<sub>3</sub> では八極子準長距離秩序を示す。ネマティック準長距離秩序と八極子準長距離秩序はそれぞれ、マグノンペアと 3 マグノン分子 (3 つのマグノンの束縛状態) が凝縮することで生じている。

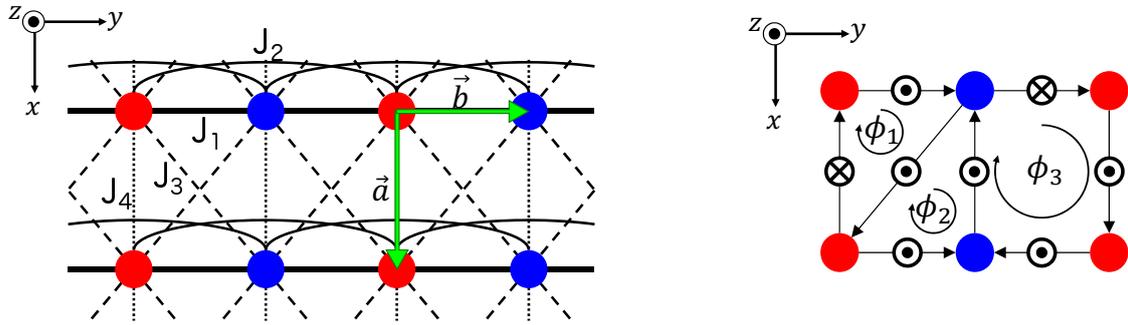
る DM 相互作用の効果を摂動論的に取り込む。この解析で、パイロクロア系と同様に、 $U(1)$  対称性を破る DM 相互作用がマグノンとマグノンペアの混成状態をもたらし、分散関係にレベル反発を生じさせることを示す。

スピンネマティック状態の理論研究の中で、 $S = 1/2$  フラストレート zigzag スピン鎖はフラストレートした強磁性体のミニマルモデルとして長い間注目されている。これは最近接サイトと次近接サイトにそれぞれ強磁性、反強磁性的な交換相互作用がはたらく 1 次元鎖であり、擬 1 次元系辺共有型銅酸化物である  $\text{Rb}_2\text{Cu}_2\text{Mo}_3\text{O}_{12}$ ,  $\text{NaCu}_2\text{O}_2$ ,  $\text{LiCuVO}_4$ ,  $\text{LiCu}_2\text{O}_2$  などの磁性を記述するモデルとして活発に研究されている [35, 38–40, 53–58]。この系のハミルトニアンは以下の形で与えられる。

$$\mathcal{H} = \sum_{l,i} (J_1 \mathbf{S}_{l,i} \cdot \mathbf{S}_{l,i+1} + J_2 \mathbf{S}_{l,i} \cdot \mathbf{S}_{l,i+2} - \mathbf{h} \cdot \mathbf{S}_{l,i}) \quad (3.42)$$

ここで、 $J_1$  は強磁性相互作用、 $J_2$  は反強磁性相互作用、 $\mathbf{h}$  は磁場である (図 3.14)。また、 $l$  は鎖インデックス、 $i$  は鎖  $l$  上のサイトインデックスである。この  $S = 1/2$  フラストレート zigzag スピン鎖における基底状態の磁場中相図は Hikihara らによって詳細に調べられており、その結果が図 3.15 である ([38] から引用)。図中の F の領域が飽和磁化状態であり、SDW<sub>2</sub> と N の領域の高磁場側の非常に広いパラメータ領域 ( $-3.5 \leq J_1/J_2 \leq 0$ ) でマグノンペアがマグノンとともに低エネルギー励起として現れることが分かっている。

本節ではこのような  $S = 1/2$  フラストレート zigzag スピン鎖が弱く結合し 2 次元系をなす系について、DM 相互作用を導入して計算した分散関係を紹介する。モデルとして図 3.16 を考える (赤丸と青丸はそ



(a) 弱く結合した zigzag スピン鎖。単位胞内の A サイト (赤) と B サイト (青) を持つ。鎖方向の交換相互作用  $J_1$ ,  $J_2$  に加えて、鎖間に小さな交換相互作用  $J_3$ ,  $J_4$  を持つ。 $J_3$  は隣接する鎖の近接 AB サイト間の、 $J_4$  は隣接する鎖の近接 AA または BB サイト間の交換相互作用である。鎖間方向の基本並進ベクトルを  $\mathbf{a}$ , 鎖方向を  $\mathbf{b}$  とした。

(b) DM ベクトルの  $z$  成分と磁束。2 サイト間の矢印の向きを反転させると DM ベクトルの向きも反転する。各ボンドで DM ベクトルの  $z$  成分  $D_{\parallel}^z, D_{\perp}^z, D_{\times}^z$  に依存した位相を獲得する。各々のループを貫く磁束  $\phi_1, \phi_2, \phi_3$  の和をとると 0 である。

図 3.16  $S = 1/2$  フラストレート zigzag スピン鎖の結合モデル

それぞれ単位胞内の A サイト、B サイト)。そのハミルトニアンは

$$\mathcal{H} = \sum_{l,i} (J_1 \mathbf{S}_{l,i} \cdot \mathbf{S}_{l,i+1} + J_2 \mathbf{S}_{l,i} \cdot \mathbf{S}_{l,i+2} + J_3 (\mathbf{S}_{l,i} \cdot \mathbf{S}_{l+1,i+1} + \mathbf{S}_{l,i} \cdot \mathbf{S}_{l+1,i-1}) + J_4 \mathbf{S}_{l,i} \cdot \mathbf{S}_{l+1,i} - \mathbf{h} \cdot \mathbf{S}_{l,i}) + \mathcal{H}_{\text{DM}} \quad (3.43)$$

$$\mathcal{H}_{\text{DM}} = \sum_{l,i} (D_{\parallel} \cdot (\mathbf{S}_{l,i} \times \mathbf{S}_{l,i+1}) + D_{\perp} \cdot (\mathbf{S}_{l,i} \times \mathbf{S}_{l+1,i}) + D_{\times} \cdot (\mathbf{S}_{l,i} \times \mathbf{S}_{l+1,i-1})) \quad (3.44)$$

と書ける。鎖方向の交換相互作用  $J_1, J_2$  に加えて、鎖間に小さな交換相互作用  $J_3, J_4$  を持つ。図 3.16 に示すように、 $J_3$  は隣接する鎖の近接 AB サイト間の交換相互作用、 $J_4$  は隣接する鎖の近接 AA または BB サイト間の交換相互作用である。また、3つの DM ベクトルはそれぞれ次のように定義する。

$$D_{\parallel} = \begin{cases} (D_{\parallel}^x, 0, D_{\parallel}^z) & ; i \in A \\ (D_{\parallel}^x, 0, -D_{\parallel}^z) & ; i \in B \end{cases} \quad (3.45)$$

$$D_{\perp} = \begin{cases} (D_{\perp}^x, 0, D_{\perp}^z) & ; i \in A \\ (D_{\perp}^x, 0, -D_{\perp}^z) & ; i \in B \end{cases} \quad (3.46)$$

$$D_{\times} = \begin{cases} \mathbf{0} & ; i \in A \\ (0, 0, D_{\times}^z) & ; i \in B \end{cases} \quad (3.47)$$

2つのサイトを持つ単位胞を考え、DM ベクトルの  $z$  成分はスタッガードにしている。これは、ベリー曲率を有限に出すためである<sup>\*5</sup>。また、バンドが有限のベリー曲率を獲得するためには DM ベクトルと格子の幾何学的性質が重要であると考えられており、DM ベクトルによって生じる疑似的な磁束を持つループの形状が2種類以上あることが必要であるということが知られている [45]。これを実現するために、図

\*5 ベリー曲率はすべてのバンドについて和をとると 0 になるため、1 バンドの場合、常に 0 となる。

3.16(b) のように鎖間方向の DM ベクトルもスタッガードにし、とびとびに斜めの DM ベクトルを導入することで三角形と四角形のループを作った\*6。

飽和磁化状態とそのエネルギーはそれぞれ

$$|\text{FP}\rangle = \bigotimes_{l,i} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{l,i} \quad (3.48)$$

$$E_0 = \frac{N}{4} (J_1 + J_2 + 2J_3 + J_4) - \frac{Nh}{2} \quad (3.49)$$

と書ける。\$N\$ は全サイト数である。\$E\_0\$ を原点として、以下でマグノン、マグノンペアの分散関係を示す。

### 3.2.1 マグノン

前節と同様にマグノン励起状態を

$$|\alpha\rangle = \frac{1}{\sqrt{N_\alpha}} \sum_l \sum_{i \in \alpha} e^{-ik \cdot r_{l,i}} S_{l,i}^- |\text{FP}\rangle \quad (3.50)$$

と書く。規格化因子 \$\frac{1}{\sqrt{N\_\alpha}}\$ は副格子 \$\alpha\$ (\$\alpha = \text{A}, \text{B}\$) にあるサイトの総数であり、\$N\_A + N\_B = N\$ である。ハミルトニアン of 行列要素は

$$\langle \text{A} | \mathcal{H} | \text{A} \rangle - E_0 = -J_1 + J_2 (\cos \mathbf{k} \cdot 2\mathbf{b} - 1) - 2J_3 + J_4 (\cos \mathbf{k} \cdot \mathbf{a} - 1) + h - D_\perp^z \sin \mathbf{k} \cdot \mathbf{b} \quad (3.51)$$

$$\langle \text{B} | \mathcal{H} | \text{B} \rangle - E_0 = -J_1 + J_2 (\cos \mathbf{k} \cdot 2\mathbf{b} - 1) - 2J_3 + J_4 (\cos \mathbf{k} \cdot \mathbf{a} - 1) + h + D_\perp^z \sin \mathbf{k} \cdot \mathbf{b} \quad (3.52)$$

$$\langle \text{B} | \mathcal{H} | \text{A} \rangle - E_0 = J_1 \cos \mathbf{k} \cdot \mathbf{b} + J_3 (\cos \mathbf{k} \cdot (\mathbf{a} + \mathbf{b}) + \cos \mathbf{k} \cdot (\mathbf{a} - \mathbf{b})) + iD_\parallel^z \cos \mathbf{k} \cdot \mathbf{b} - \frac{iD_\times^z}{2} e^{ik \cdot (\mathbf{b} - \mathbf{a})} \quad (3.53)$$

$$= \langle \text{A} | \mathcal{H} | \text{B} \rangle^* - E_0 \quad (3.54)$$

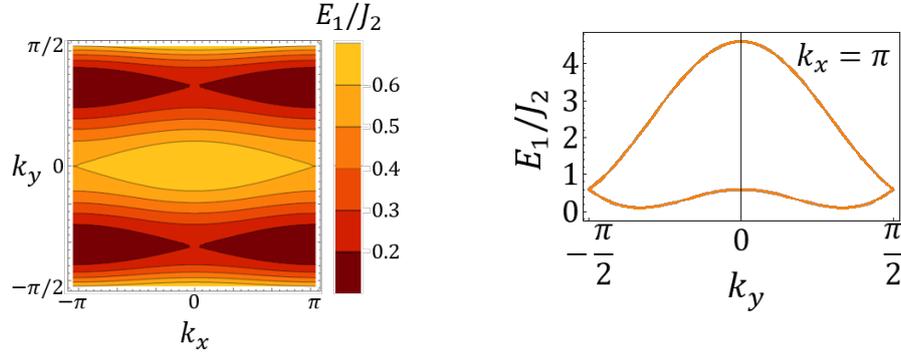
となる。これを対角化して得られる分散関係を図 3.17 に示した。左図はブリルアンゾーン全域における第 1 バンドのカラープロットであり、右図は \$k\_x\$ を固定して \$k\_y\$ 方向 (鎖方向) の分散関係を示している。

図 3.17(a) に \$J\_1/J\_2 = -2\$, \$J\_3/J\_2 = 0\$, \$J\_4/J\_2 = 0.05\$, \$D\_\parallel^z/J\_2 = D\_\perp^z/J\_2 = D\_\times^z/J\_2 = 0\$, \$h/J\_2 = h\_{c1}/J\_2 + 0.1\$ のときの分散関係を示す。鎖間に反強磁性的な結合を入れたため \$k\_x = \pm\pi\$ に最小値があり、鎖間は反強磁性的になっていることが分かる。鎖内はフラストレーションのため非整合な点に最小値がある。図 3.17(b) に DM 相互作用 \$D\_\parallel^z/J\_2 = D\_\perp^z/J\_2 = D\_\times^z/J\_2 = 0.1\$ を導入した分散関係を示す。鎖間の DM 相互作用によってエネルギー最小点は非整合な波数にずれる。さらに、2つのバンドは DM 相互作用の大きさに依存したギャップを持つ。挿入図はギャップ部分 (図中の黒破線) を拡大したものである。

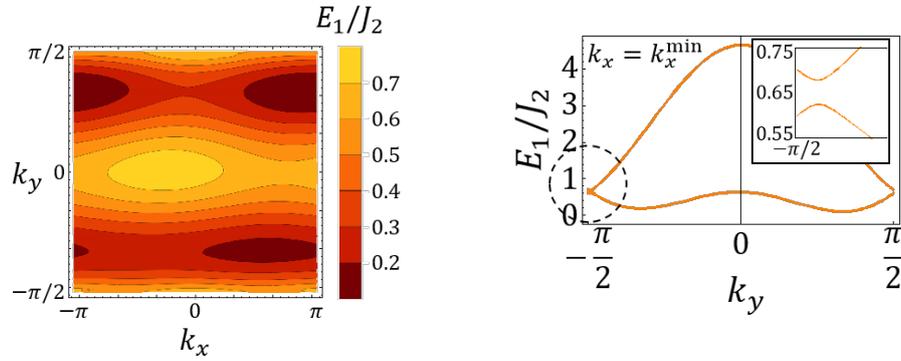
### 3.2.2 マグノンペア

双 2 次相互作用を持つパイロクロア反強磁性体と同様の議論から、制限されたヒルベルト空間内で変分法的にマグノンペアの固有値、固有状態を求める。ここで、\$S = 1/2\$ フラストレート zigzag スピン鎖 (\$J\_3 = J\_4 = 0\$) における飽和磁場 (第 1 バンドがギャップレスになる磁場) は Kecke らによって詳細に調

\*6 実際、正方形のループしかない場合や、逆符号の磁束を持つ三角形のループと磁束 0 の四角形が並んだ模型ではベリー曲率は有限に出なかった。



(a) DM 相互作用がないときのマグノンの分散関係。エネルギー最小値は  $(k_x, k_y) = (\pm\pi, \pm k_y^{\min})$  にある。



(b) DM 相互作用があるときのマグノンの分散関係。エネルギー最小値は非自明な波数に現れる。また、右図挿入図は破線で囲んだ領域を拡大した。DM 相互作用によってマグノンバンド間のレベル反発が起きている。

図 3.17 マグノンの分散関係。飽和磁化状態におけるマグノン励起エネルギー  $E_1(k_x, k_y)$  について、左図は第 1 バンドのカラープロットを示し、右図は 2 本のバンドについて  $k_x$  を固定して  $k_y$  方向の分散関係を示している。各パラメータは (a)  $J_1/J_2 = -2, J_3/J_2 = 0, J_4/J_2 = 0.05, D_{\parallel}^z/J_2 = D_{\perp}^z/J_2 = D_x^z/J_2 = 0, h/J_2 = h_{c1}/J_2 + 0.1$ , (b)  $J_1/J_2 = -2, J_3/J_2 = 0, J_4/J_2 = 0.05, D_{\parallel}^z/J_2 = D_{\perp}^z/J_2 = D_x^z/J_2 = 0.1, h/J_2 = h_{c1}/J_2 + 0.1$  である。

べられており [39]、彼らの結果と本研究の変分計算による飽和磁場を比べることで、 $J_1/J_2 = -2$  のとき、マグノンペアの状態として 2 つのマグノンが第 3 近接サイト上にいる場合までを考えれば、十分よい近似になっていることを確かめた。したがって、以下のような状態を考える。

$$|AB\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_l \sum_{i \in A} e^{-ik \cdot \frac{\mathbf{r}_{l,i} + \mathbf{r}_{l,i+1}}{2}} |-\rangle_{l,i} |-\rangle_{l,i+1}, \quad |\overline{AB}\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_l \sum_{i \in B} e^{-ik \cdot \frac{\mathbf{r}_{l,i} + \mathbf{r}_{l,i+1}}{2}} |-\rangle_{l,i} |-\rangle_{l,i+1} \quad (3.55)$$

$$|AA\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_l \sum_{i \in A} e^{-ik \cdot \frac{\mathbf{r}_{l,i} + \mathbf{r}_{l,i+2}}{2}} |-\rangle_{l,i} |-\rangle_{l,i+2}, \quad |BB\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_l \sum_{i \in B} e^{-ik \cdot \frac{\mathbf{r}_{l,i} + \mathbf{r}_{l,i+2}}{2}} |-\rangle_{l,i} |-\rangle_{l,i+2} \quad (3.56)$$

$$|AB_2\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_l \sum_{i \in A} e^{-ik \cdot \frac{\mathbf{r}_{l,i} + \mathbf{r}_{l,i+3}}{2}} |-\rangle_{l,i} |-\rangle_{l,i+3}, \quad |\overline{AB}_2\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_l \sum_{i \in B} e^{-ik \cdot \frac{\mathbf{r}_{l,i} + \mathbf{r}_{l,i+3}}{2}} |-\rangle_{l,i} |-\rangle_{l,i+3} \quad (3.57)$$

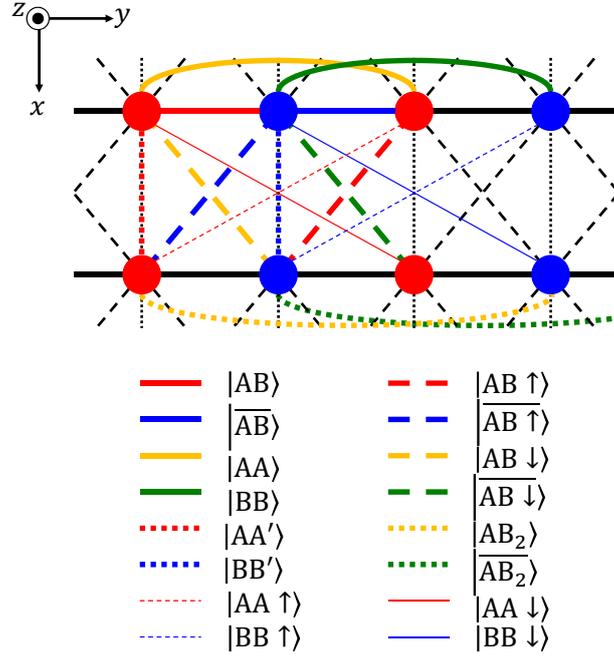


図 3.18 考慮するマグノンペア状態

$$|AA'\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_l \sum_{i \in A} e^{-ik \cdot \frac{\mathbf{r}_{l,i} + \mathbf{r}_{l+1,i}}{2}} |-\rangle_{l,i} |-\rangle_{l+1,i}, \quad |BB'\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_l \sum_{i \in B} e^{-ik \cdot \frac{\mathbf{r}_{l,i} + \mathbf{r}_{l+1,i}}{2}} |-\rangle_{l,i} |-\rangle_{l+1,i} \quad (3.58)$$

$$|AB \uparrow\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_l \sum_{i \in A} e^{-ik \cdot \frac{\mathbf{r}_{l,i} + \mathbf{r}_{l+1,i-1}}{2}} |-\rangle_{l,i} |-\rangle_{l+1,i-1}, \quad |\overline{AB} \uparrow\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_l \sum_{i \in B} e^{-ik \cdot \frac{\mathbf{r}_{l,i} + \mathbf{r}_{l+1,i-1}}{2}} |-\rangle_{l,i} |-\rangle_{l+1,i-1} \quad (3.59)$$

$$|AB \downarrow\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_l \sum_{i \in A} e^{-ik \cdot \frac{\mathbf{r}_{l,i} + \mathbf{r}_{l+1,i+1}}{2}} |-\rangle_{l,i} |-\rangle_{l+1,i+1}, \quad |\overline{AB} \downarrow\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_l \sum_{i \in B} e^{-ik \cdot \frac{\mathbf{r}_{l,i} + \mathbf{r}_{l+1,i+1}}{2}} |-\rangle_{l,i} |-\rangle_{l+1,i+1} \quad (3.60)$$

$$|AA \uparrow\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_l \sum_{i \in A} e^{-ik \cdot \frac{\mathbf{r}_{l,i} + \mathbf{r}_{l+1,i-2}}{2}} |-\rangle_{l,i} |-\rangle_{l+1,i-2}, \quad |BB \uparrow\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_l \sum_{i \in B} e^{-ik \cdot \frac{\mathbf{r}_{l,i} + \mathbf{r}_{l+1,i-2}}{2}} |-\rangle_{l,i} |-\rangle_{l+1,i-2} \quad (3.61)$$

$$|AA \downarrow\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_l \sum_{i \in A} e^{-ik \cdot \frac{\mathbf{r}_{l,i} + \mathbf{r}_{l+1,i+2}}{2}} |-\rangle_{l,i} |-\rangle_{l+1,i+2}, \quad |BB \downarrow\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_l \sum_{i \in B} e^{-ik \cdot \frac{\mathbf{r}_{l,i} + \mathbf{r}_{l+1,i+2}}{2}} |-\rangle_{l,i} |-\rangle_{l+1,i+2} \quad (3.62)$$

式 (3.55-3.57) はマグノン分子の重心が鎖上に、式 (3.58-3.62) は鎖間にある。ここで考えられているマグノンペア状態を図 3.18 に示した。前節のパイロクロア系で考えたマグノンペアと同様、正確にはこれらのマグノンペア演算子はボソンの交換関係からずれるが、マグノンペアが希薄な低温領域を考えると、第 4 章の熱ホール伝導度の解析ではマグノンペアを単純なボーズ粒子として扱う。

パイロクロア系と同様に行列要素を求め (付録 F)、その行列を対角化して得られる分散関係を図 3.19 に示した。左図はブリルアンゾーン全域における第 1 バンドのカラープロットであり、右図は  $k_x$  を固定して  $k_y$  方向 (鎖方向) の低エネルギー領域の分散関係を示している。図 3.19(a) に  $J_1/J_2 = -2$ ,  $J_3/J_2 = 0$ ,

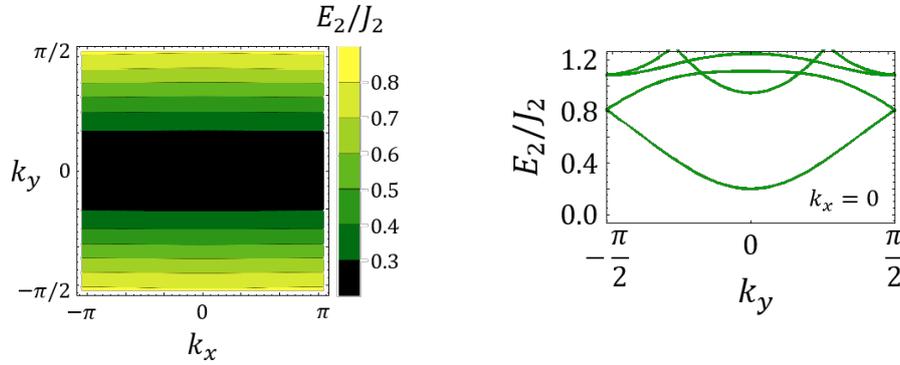
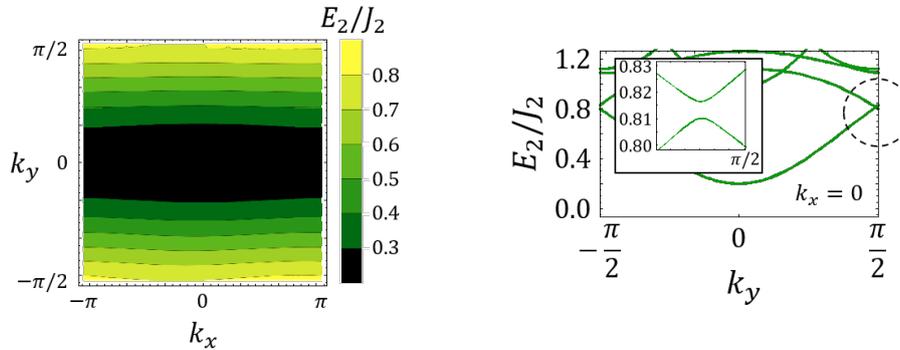
(a) DM 相互作用がないときのマグノンペアの分散関係。エネルギー最小値は  $\mathbf{k} = 0$  にある。(b) DM 相互作用があるときのマグノンの分散関係。エネルギー最小値は  $\mathbf{k} = 0$  にある。また、右図挿入図は破線で囲んだ領域を拡大した。DM 相互作用によってマグノンペアバンド間のレベル反発が起きている。

図 3.19 マグノンペアの分散関係。飽和磁化状態におけるマグノンペア励起エネルギー  $E_2(k_x, k_y)$  について、左図は第 1 バンドのカラープロットを示し、右図は 2 本のバンドについて  $k_x$  を固定して  $k_y$  方向の分散関係を示している。各パラメータは (a)  $J_1/J_2 = -2, J_3/J_2 = 0, J_4/J_2 = 0.05, D_{\parallel}^z/J_2 = D_{\perp}^z/J_2 = D_{\times}^z/J_2 = 0, h/J_2 = h_{c2}/J_2 + 0.1$ , (b)  $J_1/J_2 = -2, J_3/J_2 = 0, J_4/J_2 = 0.05, D_{\parallel}^z/J_2 = D_{\perp}^z/J_2 = D_{\times}^z/J_2 = 0.1, h/J_2 = h_{c2}/J_2 + 0.1$  である。

$J_4/J_2 = 0.05, D_{\parallel}^z/J_2 = D_{\perp}^z/J_2 = D_{\times}^z/J_2 = 0, h = h_{c2} + 0.1$  のときの分散関係を示す。2 副格子モデルで計算したため  $\mathbf{k} = 0$  にエネルギー最小値が現れるが、単位胞に 1 サイトとなるように計算すると、エネルギー最小値は  $(k_x, k_y) = (0, \pi)$  となり、 $h = h_{c2}$  でマグノンペア凝縮が起これると鎖方向にはスタッガード、鎖間には一様なスピネマティック状態が現れると考えられる [39]。図 3.19(b) は図 3.19(a) と等しい交換相互作用に加え、DM 相互作用  $D_{\parallel}^z/J_2 = D_{\perp}^z/J_2 = D_{\times}^z/J_2 = 0.1$  を導入した分散関係を示す。鎖間の DM 相互作用によってエネルギー最小点は非整合な波数にずれる。さらに、バンド間には DM 相互作用の大きさに依存したギャップが現れる。挿入図はギャップ部分（図中の黒破線）を拡大したものである。

最後に、マグノンとマグノンペアの臨界磁場について述べる。パイロクロア系に比べ、このモデルはマグノンペアが安定化される（マグノンペアの励起エネルギーの方が小さくなる）磁場領域が非常に狭い。図 3.20 に  $J_1/J_2 = -2, J_3/J_2 = 0, J_4/J_2 = 0.05$  のときのマグノンとマグノンペアの臨界磁場を DM 相互作用

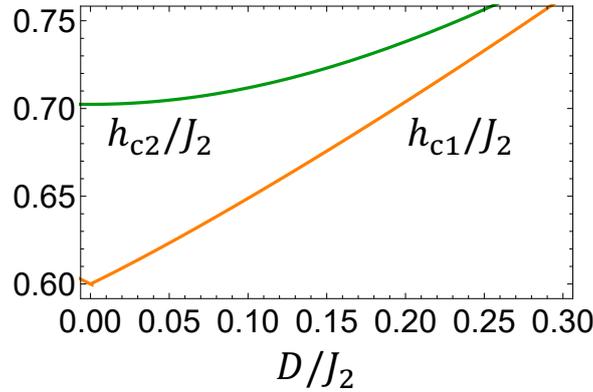


図 3.20 DM 相互作用に対する臨界磁場の変化 ( $J_1/J_2 = -2$ ,  $J_3/J_2 = 0$ ,  $J_4/J_2 = 0.05$ ,  $D_{\parallel}^z = D_{\perp}^z = D_{\times}^z = D$  とした)。縦軸を磁場として、橙線と緑線はそれぞれマグノンの臨界磁場  $h_{c1}$ 、マグノンペアの臨界磁場  $h_{c2}$  を示す。磁場を下げて  $h_{c1}$  と  $h_{c2}$  に到達すると、それぞれマグノンとマグノンペアの凝縮が起こる。また、パイロクロア系とは異なり、マグノンペアの臨界磁場は DM 相互作用に依存することが分かる。

用についてプロットした。これから分かるように、それらの臨界磁場の差はわずか  $10^{-2}$ - $10^{-1}$  程度であることが分かる。これは言い換えると、飽和磁場近傍でマグノンとマグノンペアのギャップが近い値を持つということである。また、パイロクロア系と異なりマグノンペアの臨界磁場は DM 相互作用に依存している。これは、離れたサイト上のマグノンペアまで考慮に入れたことによって、より正しくマグノンペアの臨界磁場が評価できたためと考えられる。DM 相互作用が大きくなるほど飽和磁化状態は不安定になるため、マグノン、マグノンペアともに臨界磁場が大きくなっている。

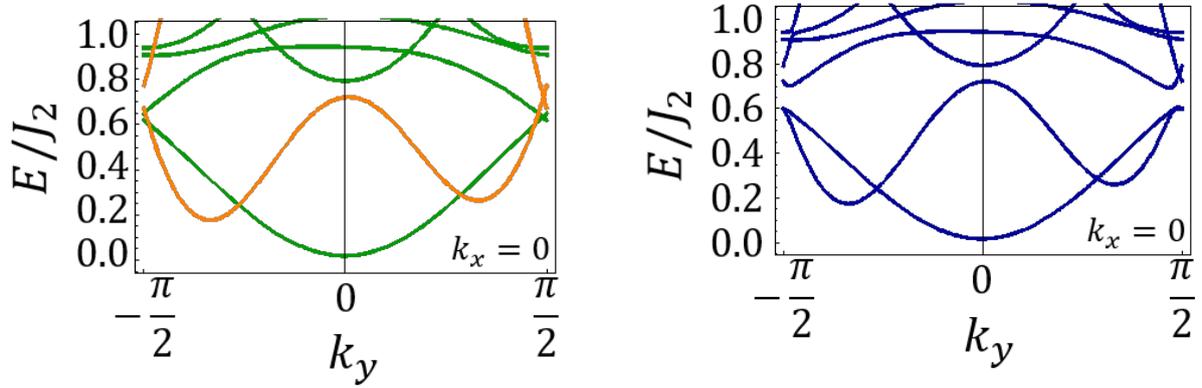
### 3.2.3 マグノンとマグノンペアの混成

パイロクロア系と同様に、磁場に対して垂直方向の DM ベクトルを考慮すると、すなわち式 (3.41) に現れる非対角ブロック行列  $\mathcal{M}^{\text{hybrid}}$  を考慮すると、マグノンとマグノンペアの混成が起きる。 $\mathcal{M}^{\text{hybrid}}$  のゼロでない行列要素は以下のように書ける (付録 F)。

$$\langle AB | \mathcal{H} | A \rangle = \langle \overline{AB} | \mathcal{H} | A \rangle^* = \langle AB | \mathcal{H} | B \rangle^* = \langle \overline{AB} | \mathcal{H} | B \rangle = \frac{i}{2} D_{\parallel}^x d^{ik \cdot \frac{b}{2}} \quad (3.63)$$

$$\langle AA' | \mathcal{H} | A \rangle = \langle BB' | \mathcal{H} | B \rangle = -D_{\perp}^x \sin \mathbf{k} \cdot \frac{\mathbf{a}}{2} \quad (3.64)$$

$J_1/J_2 = -2$ ,  $J_3/J_2 = 0$ ,  $J_4/J_2 = 0.05$ ,  $D_{\parallel}^z/J_2 = D_{\perp}^z/J_2 = D_{\times}^z/J_2 = 0.1$ ,  $h/J_2 = h_{c2}/J_2 + 0.01$  におけるマグノンとマグノンペアの分散関係を重ねたものを図 3.21(a) に、 $D_{\parallel}^x/J_2 = D_{\perp}^x/J_2 = 0.1$  として両者の混成が起きたときの分散関係を図 3.21(b) に示す。図 3.21(b) における第 1 バンドと第 2 バンドのエネルギー差はブリルアンゾーン全域で有限である。すなわち、図 3.21(a) で交差しているマグノンバンドとマグノンペアバンドは  $\mathcal{M}^{\text{hybrid}}$  により、レベル反発を起こし、各  $k_x$  線上の 4 箇所ギャップが開いている。図 3.22 に第 1 バンドと第 2 バンドのエネルギー差を図示した。このレベル反発によるギャップ (第 1 バンドと第 2 バンドのエネルギー差) は非常に小さく、 $0.002J_2$ - $0.005J_2$  程度である。また、このギャップは DM 相互作用とともに大きくなることを数値的に確かめている。



(a) マグノンとマグノンペアの混成を起こす非対角ブロック行列  $\mathcal{M}^{\text{hybrid}}$  の寄与を無視したときの分散関係である。橙線と緑線はそれぞれマグノンとマグノンペアの分散関係と一致する。

(b) 混成されたマグノンとマグノンペアの分散関係。マグノンバンドとマグノンペアバンドの交差点においてレベル反発が見られる (図 3.22)。各バンドの状態はマグノンとマグノンペアの混成状態として書かれる。

図 3.21 マグノンとマグノンペアが共存する場合の分散関係。飽和磁化状態において、マグノンとマグノンペアが混成された状態で励起されるときに励起エネルギー  $E(k_x, k_y)$  を、 $k_x = 0$  線における分散関係として示す。各パラメータは  $J_1/J_2 = -2, J_3/J_2 = 0, J_4/J_2 = 0.05, D_{\parallel}^z/J_2 = D_{\perp}^z/J_2 = D_{\times}^z/J_2 = 0.1, h/J_2 = h_c2/J_2 + 0.1$  である。

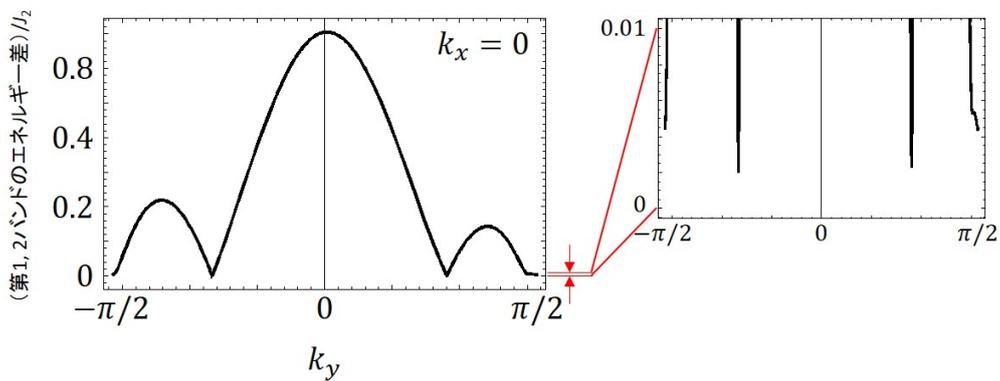


図 3.22 混成第 1 バンドと第 2 バンドのギャップの  $k_y$  依存性 (直線  $k_x = 0$  上の波数依存性)。ギャップが小さくなっている 4 つの波数ではレベル反発が生じている。他の各  $k_x$  線上でも同様に 4 つの波数でレベル反発が起こる。



## 第 4 章

# ベリー曲率と熱ホール伝導度

前章では双 2 次相互作用を持つパイロクロア反強磁性体（以下、パイロクロア系）と  $S = 1/2$  フラストレート zigzag スピン鎖が弱く結合した 2 次元磁性体（以下、zigzag スピン鎖系）における、強磁場下でのマグノン、マグノンペアの分散関係を紹介した。本章では、まず第 2.4 節で説明した数値的なベリー曲率の見積もり方法を用いてベリー曲率を求める。次に前章で得られた分散関係と本章で計算するベリー曲率を用いて、マグノンとマグノンペアが低エネルギー励起状態となる飽和磁化状態（外部磁場によってスピンのすべてが磁場の方向を向いた完全偏極状態）における熱ホール効果を解析する。ここで、第 2.2 節の終わりに記述した通り、低温領域を考えることでマグノンペアを単純なボーズ粒子として扱うことが可能である。したがって、マグノン、マグノンペアによる熱ホール伝導度は第 2.2 節でレビューした定式化を用いて

$$\kappa_{xy} = \frac{k_B^2 T}{\hbar V} \sum_{n, \mathbf{k}} c_2(\rho_n) \Omega_n^z(\mathbf{k}) \quad (4.1)$$

と書ける。ただし、2 次元系では系の体積  $V$  は系の面積  $S$  に代わる [59]。したがって、熱ホール伝導度の単位は 3 次元系では  $[\text{W}/\text{Km}]$ , 2 次元系では  $[\text{W}/\text{K}]$  となる。以下では、先行研究で測定されているパイロクロア強磁性体の熱ホール伝導度の大きさとの比較も行っている。その際、弱く結合した zigzag スピン鎖系について、2 次元平面が  $z$  方向に積層された 3 次元系を考えることで両者の比較を行う。

### 4.1 双 2 次相互作用を持つパイロクロア反強磁性体

双 2 次相互作用を持つパイロクロア反強磁性体で現れるマグノン、マグノンペアのベリー曲率の  $z$  成分を求める。Fukui らの方法を用いる際に波数空間の離散化を行う必要がある。まず、数値計算を簡単に行うためブリルアンゾーンを再定義する。図 3.6 に示したブリルアンゾーンでは各  $k_z$  面で八角形や四角形になっている。ここではどの断面を見ても平行四辺形になるように図 4.2 のようなブリルアンゾーンを考える。このブリルアンゾーンの取り方について説明する。まず、図 4.1 のように FCC 格子の 3 つの逆格子ベクトルで張られる平行六面体を考える。この平行六面体は  $k_z$  に依存して三角形や六角形の断面を持つ。ここで、上側にある緑色の三角形を底面に持つ三角錐と下側にある橙色の三角形を底面に持つ三角錐を、逆格子ベクトル  $\mathbf{b}_2$  を用いてそれぞれ  $-\mathbf{b}_2, +\mathbf{b}_2$  で平行移動する（図 4.2 中に、それぞれの三角錐の頂点に関する平行移動を破線矢印で、各三角錐の平行移動後の底面を実線で示した）。その結果、上面と下

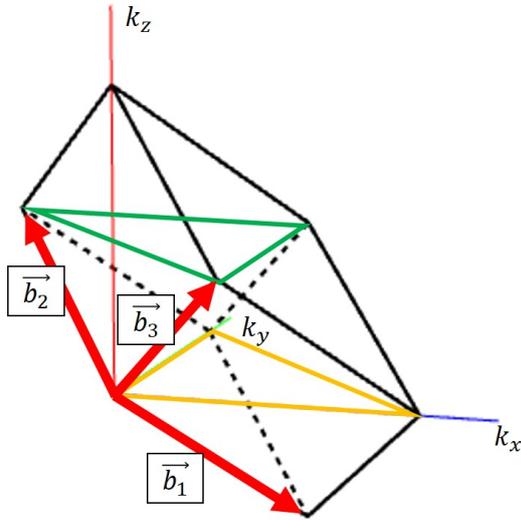


図 4.1 FCC 格子の 3 つの逆格子ベクトルで張られる平行六面体。青、緑、赤細線はそれぞれ  $k_x, k_y, k_z$  軸。 $\mathbf{b}_1, \mathbf{b}_2, \mathbf{b}_3$  は式 (3.3) で示した FCC 格子の逆格子ベクトルである。

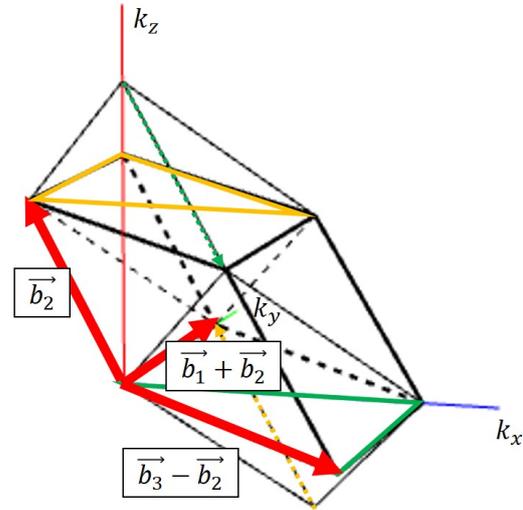


図 4.2 各  $k_z$  断面が平行四辺形になるように取り直したブリルアンゾーン

面それぞれで、緑と橙の三角形を組み合わせた平行四辺形が形成され、全ての  $k_z$  での断面が平行四辺形となる平行六面体を作ることができる<sup>\*1</sup>。また、図 4.2 中の黒細線は図 4.1 の平行六面体を表す。

この平行六面体を  $\mathbf{b}_1 + \mathbf{b}_2, \mathbf{b}_3 - \mathbf{b}_2, \mathbf{b}_2$  方向にそれぞれ 99 分割し、マグノン、マグノンペアのベリー曲率を求めたものを図 4.4, 図 4.5 に示す。ここでは、図 4.3 に示すように  $k_z$  方向にある 100 枚の  $k_x k_y$  面のうち、1, 25, 50, 75 枚目の面のベリー曲率を示しており、 $n$  枚目の面は  $k_z = \frac{(n-1)\pi}{99\sqrt{2}}$  面に対応する。また、双 2 次相互作用、DM 相互作用は  $J_2/J_1 = -0.2, D/J_1 = 0.1$  としている<sup>\*2</sup>。 $D/J_1 = 0$  のときはマグノンバンド、マグノンペアバンドのベリー曲率はどちらも 0 となる<sup>\*3</sup>。先行研究からマグノンバンドが DM 相互作用によってベリー曲率を獲得するという事は知られていたが、図 4.5 はパイロクロア磁性体において、マグノンペアバンドも DM 相互作用によりベリー曲率を得ることを示している。マグノンバンドが持つベリー曲率について述べる。まず、第 1 バンドについて、ベリー曲率が原点周りに集中していることが分かる。これは、DM 相互作用によってフラットであったバンドが大きく曲げられたためである。次に第 2

<sup>\*1</sup> 新しく定義したブリルアンゾーンは

$$\mathbf{b}'_1 = \mathbf{b}_3 - \mathbf{b}_2, \quad \mathbf{b}'_2 = \mathbf{b}_1 + \mathbf{b}_2, \quad \mathbf{b}'_3 = \mathbf{b}_2 \quad (4.2)$$

で張られる平行六面体である。これらの 3 つのベクトルを逆格子ベクトルだと思えば対応する基本並進ベクトルは

$$\mathbf{a}'_1 = \mathbf{a}_3, \quad \mathbf{a}'_2 = \mathbf{a}_1, \quad \mathbf{a}'_3 = -\mathbf{a}_1 + \mathbf{a}_2 + \mathbf{a}_3 \quad (4.3)$$

となる。また、逆格子ベクトル  $\mathbf{b}_i$  ( $i = 1, 2, 3$ ) で張られる平行六面体も逆格子ベクトル  $\mathbf{b}'_i$  ( $i = 1, 2, 3$ ) で張られる平行六面体もブリルアンゾーンの性質を満たしており、当然、元のブリルアンゾーン (図 3.6) と体積は等しい。

<sup>\*2</sup> ベリー曲率はバンドの固有状態によって定義される量であり、マグノン粒子数が保存されたヒルベルト空間を考える場合、磁場には依存しない。

<sup>\*3</sup> 厳密には、 $D/J_1 = 0$  のときマグノン第 1, 2 バンドとマグノンペア第 3, 4 バンドはそれぞれ 2 重縮退しているため、ベリー曲率を定義できない。ベリー曲率が定義できるバンドに関して、ベリー曲率は 0 になるという意味である。

バンドについて、 $k_z = 24\pi/(99\sqrt{2})$ ,  $74\pi/(99\sqrt{2})$  にベリー曲率が集中している波数がある。これはマグノン第2,3バンドが持つワイル点によるもので、第3バンドには同じ波数領域に逆符号のベリー曲率が大きく出ている。第3,4バンドの  $k_z = 49\pi/(99\sqrt{2})$ ,  $k_z = 24\pi/(99\sqrt{2})$ ,  $74\pi/(99\sqrt{2})$  面の同じ波数領域に現れている逆符号に大きいベリー曲率はこれらのバンド間のレベル反発によるものである。次に、マグノンペアバンドが持つベリー曲率について述べる。マグノンペアバンドは低エネルギー側の4つのバンドを採り上げたが、それらのバンド構造はマグノンバンドを反転させたものと類似している。すなわち、マグノンペア第1バンドはマグノン第4バンドのバンド構造と同等の性質を持つ。したがってマグノンペアバンドのベリー曲率もマグノンバンドのベリー曲率と同様に理解することができる。

前章の分散関係からも分かる通り、マグノン、マグノンペアバンドには高エネルギーバンドにワイル点を持つ。ここで述べた通り、このワイル点近傍では大きな値のベリー曲率が集中するが、ワイル点を与える2つのバンドが逆符号のベリー曲率を持つために熱ホール伝導度には寄与しないことが期待されている [60]。実際、以下で示す熱ホール伝導度の結果から分かるように、ワイル点を持つ第2,3バンドの熱ホール伝導度がワイル点を持たない他のバンドと異なる挙動を示すことはない。これは言い換えると、ワイル点を与えるバンドのうち一方のバンドの熱ホール伝導度に注目しても、ワイル点まわりの大きなベリー曲率が熱ホール伝導度に寄与することがないということになる。これはワイル点がブリルアンゾーン内に2点あり、一つのバンドに注目したとき、各ワイル点で逆符号のベリー曲率を持つためであると考えられる。

さらに、本研究におけるバンドの定義は、各波数におけるエネルギーが低い順、としている。したがって、前章で述べたレベル交差によって生じる縮退線を境にバンドが滑らかにつながらない。このことは数値計算上、ベリー曲率に特異性を与える<sup>\*4\*5</sup>。本研究では、縮退線近傍において、波動関数が滑らかに変化するようにバンドを再定義すれば、ベリー曲率が特異性を持たず波数に対して滑らかに変化することを確認している。したがって、図 4.5, 図 4.5 では縮退線直上で起こる数値計算上の発散を除去したベリー曲率を示している。

これらのベリー曲率をもとに、マグノン、マグノンペアの各バンドの熱ホール伝導度を計算する。熱ホール伝導度を計算するうえで、和を積分に書き換えると  $\frac{1}{V} \sum_{\mathbf{k}} f_{\mathbf{k}} \rightarrow \frac{1}{(2\pi)^3} \int d^3\mathbf{k} f(\mathbf{k})$  となる。したがって熱ホール伝導度は、Fukui らの方法で求めたベリー曲率を用いて以下のように書ける<sup>\*6</sup>。

$$\kappa_{xy} = \frac{k_B^2 T}{\hbar(2\pi)^3} \sum_{n, \mathbf{k}} c_2(\rho_n) \left[ -\frac{\text{Im}\tilde{F}_{12}^n}{\Delta k_x \Delta k_y} \right] \Delta k_x \Delta k_y \Delta k_z \quad [\text{W/Km}] \quad (4.4)$$

計算を進める際、簡単のため最近接サイト間の距離を1とし、 $\Delta k_z = \frac{\pi}{99\sqrt{2}}$  とした。また、以下では温度と磁場をそれぞれ  $t' \equiv k_B T/J_1$ ,  $x \equiv h/J_1 - h_{c2}/J_1$  とし<sup>\*7</sup>、温度依存性、磁場依存性を示している。その

<sup>\*4</sup> 波数空間におけるベリー曲率は波動関数の波数微分で定義される。本研究では Fukui らの考案したベリー曲率の数値的見積もり方法を利用し、離散化した波数空間の近接する点上における波動関数の重なりから、ベリー曲率を計算している。滑らかなバンドを定義した場合、その重なりは（波動関数が規格化されている場合）1に近い値となる。一方、本研究におけるバンドの定義のように滑らかでないバンドについて同様の計算を行うと、その重なりは0に近い値となり、それが特異性を与えている。

<sup>\*5</sup> この縮退線は、今考えている平行六面体の  $k_z = 0$  面（下底面）と  $k_z = \pi/\sqrt{2}$  面（上底面）のみに現れる

<sup>\*6</sup> 第2.4節で述べた通り、 $\Omega_n^z(\mathbf{k}) = -\frac{\text{Im}\tilde{F}_{12}^n}{\Delta k_x \Delta k_y}$  である。

<sup>\*7</sup> マグノンペアの臨界磁場を原点にとっているため、マグノンペアのギャップは  $2x$  と書くことができる。

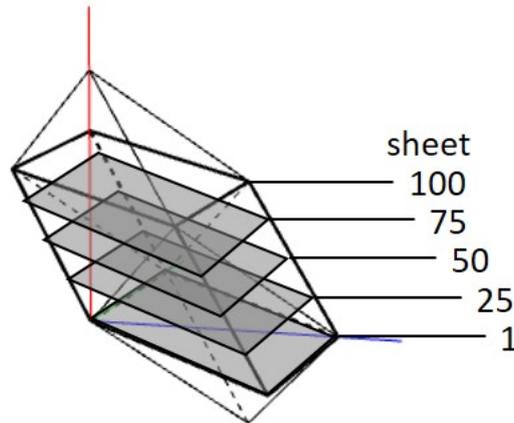


図4.3  $k_z$  方向にある 100 枚の  $k_x k_y$  面のうち、1, 25, 50, 75 枚目の面のベリー曲率を図 4.4, 図 4.5 に示している。ここで、 $n$  枚目の面は  $k_z = \frac{(n-1)\pi}{99\sqrt{2}}$  面に対応する。

際、縦軸は本来の熱ホール伝導度を  $k_B J_1 / \hbar$  で割って示す。実際の物質における熱ホール伝導度の値に換算する場合、 $\kappa_{xy}$  の式 (4.4) に含まれるパラメータの次元を復活させる必要がある。まず数値的に得られた  $\kappa_{xy}$  に  $k_B J_1 / \hbar \approx 1.31 J_1 \times 10^{11}$  ( $J_1$  の単位はジュール) をかける必要がある\*<sup>8</sup>。さらに、式 (4.4) に  $\Delta k_z$  があることを考慮に入れて、 $1 / \left( \frac{a}{2\sqrt{2}} \right)$  をかける必要がある\*<sup>9</sup>。例えばクロムスピネル酸化物の一つである  $\text{ZnCr}_2\text{O}_4$  の格子定数  $a = 8.328[\text{\AA}]$  [61] と反強磁性的交換相互作用  $J_1 = 4.5[\text{meV}]$  [62] を使って、実際の系における熱ホール伝導度の値を見積もる場合、以下で示す熱ホール伝導度の温度依存性、磁場依存性の縦軸に約 0.32 をかければよい\*<sup>10</sup>。  $\text{HgCr}_2\text{O}_4$  の格子定数  $a = 8.661[\text{\AA}]$  [48] と反強磁性的交換相互作用  $J_1 = 4.75[\text{K}] (= 0.41[\text{meV}])$  [63] を使う場合は約 0.028 をかければよい\*<sup>11</sup>。

熱ホール伝導度の温度依存性に関する結果を図 4.6, 図 4.7, 図 4.8 に、磁場依存性に関する結果を図 4.9, 図 4.10, 図 4.11 に示す。

図 4.6, 図 4.7 はそれぞれマグノン、マグノンペアの第  $i$  バンドの熱ホール伝導度  $\kappa_{xy}^i$  ( $i = 1, 2, 3, 4$ ) とその合計について温度依存性を示している。熱ホール伝導度の温度依存性から得られる知見を 4 点あげる。まず、温度を上げるとマグノン、マグノンペアの各バンドの熱ホール伝導度の絶対値が大きくなるこ

\*<sup>8</sup> プランク定数  $h$  を  $2\pi$  で割ったものである  $\hbar$ , ボルツマン定数  $k_B$  の値はそれぞれ  $\hbar = 1.05 \times 10^{-34}[\text{Js}]$ ,  $k_B = 1.38 \times 10^{-23}[\text{J/K}]$  である。

\*<sup>9</sup> 式 (3.2), (3.3) では実空間における格子点の最近接サイト間の距離を 1 としていたが、実際の系では格子定数  $a$  を用いて最近接サイト間の距離は  $\sqrt{2}a/4$ , 基本並進ベクトルの長さは  $\sqrt{2}a/2$  となる。すなわち基本並進ベクトルに  $\sqrt{2}a/4$  をかけているので、逆格子ベクトルは  $2\sqrt{2}/a$  をかける。

\*<sup>10</sup>  $1[\text{eV}]$  は  $1.60 \times 10^{-19}[\text{J}]$  に等しい。以下では  $g$  因子を  $g = 2$  とする。したがって、格子定数  $a = 8.33[\text{\AA}]$ , 交換相互作用  $J_1 = 4.5[\text{meV}]$  のとき、縦軸の値から実際の物質における熱ホール伝導度に変換する場合

$$\frac{2\sqrt{2}k_B J_1}{a\hbar} = \frac{2 \times 1.41 \times 4.5 \times 10^{-3} \times 1.60 \times 10^{-19}}{8.33 \times 10^{-10}} \times 1.31 \times 10^{11} \approx 0.32 \quad (4.5)$$

をかければよい。

\*<sup>11</sup> 格子定数  $a = 8.67[\text{\AA}]$ , 交換相互作用  $J_1 = 4.8[\text{K}]$  のとき、縦軸の値から実際の物質における熱ホール伝導度に変換する場合

$$\frac{2\sqrt{2}k_B J_1}{a\hbar} = \frac{2 \times 1.41 \times 4.8 \times 1.38 \times 10^{-23}}{8.67 \times 10^{-10}} \times 1.31 \times 10^{11} \approx 2.8 \times 10^{-2} \quad (4.6)$$

をかければよい。

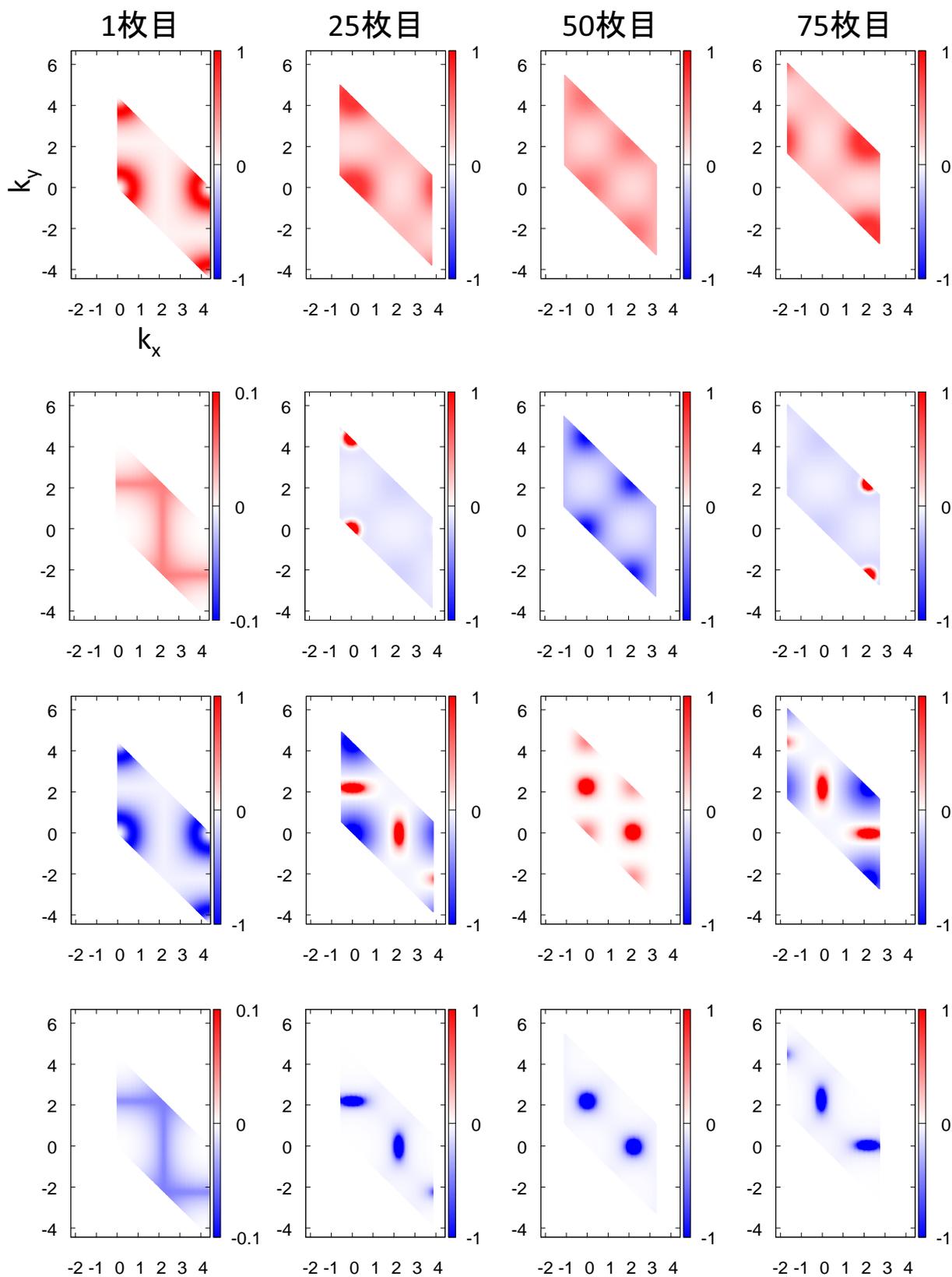


図4.4 マグノンバンドのベリー曲率 ( $J_2/J_1 = -0.2, D/J_1 = 0.1$ )。各図の縦軸、横軸はそれぞれ  $k_x, k_y$  である。上段から順にマグノン第1, 2, 3, 4バンド、左の列から順に  $k_z$  方向にある100枚の  $k_x k_y$  面のうち、1, 25, 50, 75枚目の面のベリー曲率を示している(図4.3)。また、各波数でエネルギーが低い順に第1, 2, 3, 4バンドとしている。

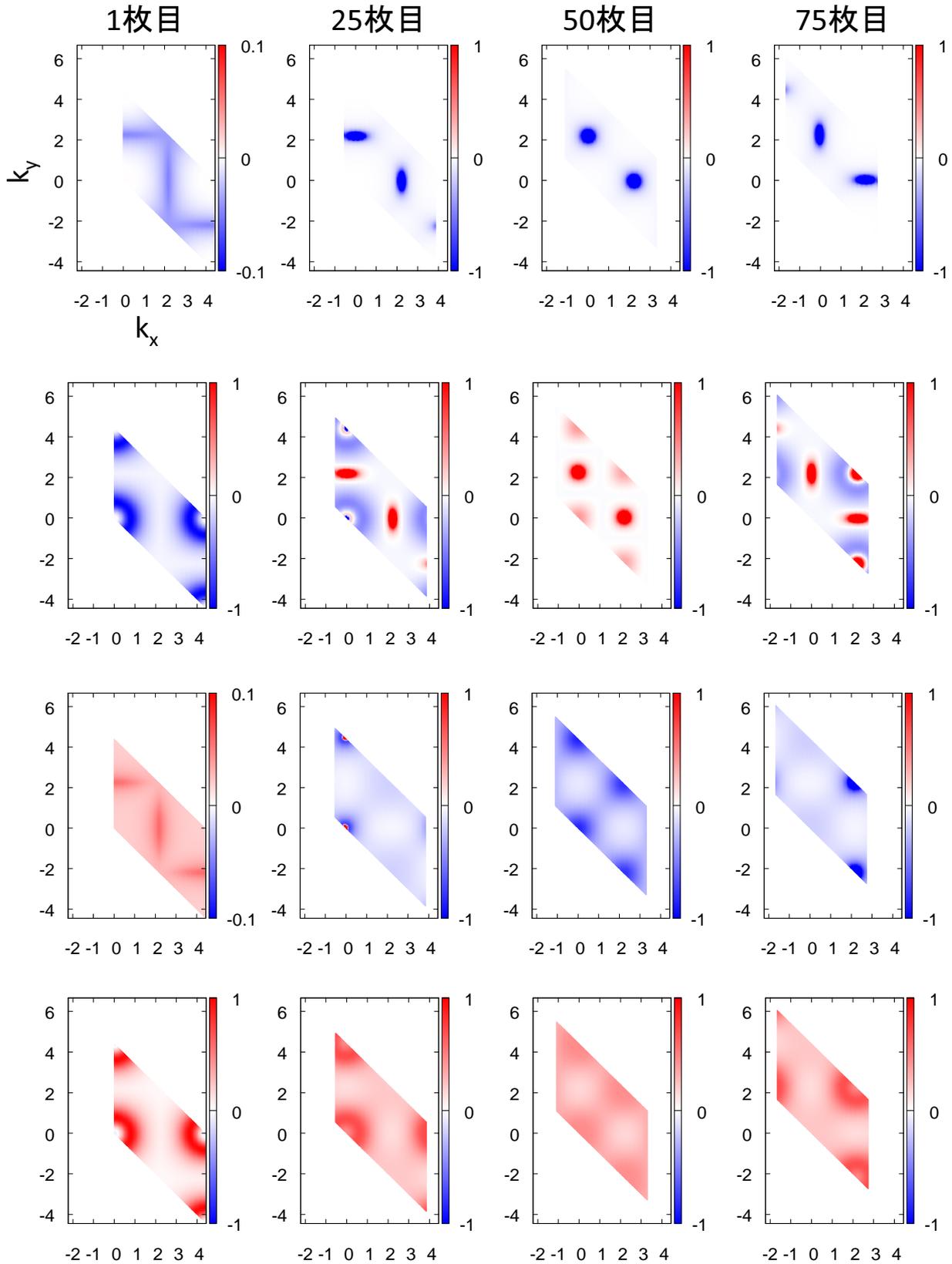


図 4.5 マグノンペアバンドのベリー曲率 ( $J_2/J_1 = -0.2$ ,  $D/J_1 = 0.1$ )。各図の縦軸、横軸はそれぞれ  $k_x, k_y$  である。上段から順にマグノンペア第 1, 2, 3, 4 バンド、左の列から順に  $k_y$  方向にある 100 枚の  $k_x, k_y$  面のうち、1, 25, 50, 75 枚目の面のベリー曲率を示している (図 4.3)。また、各波数でエネルギーが低い順に第 1, 2, 3, 4 バンドとしている。

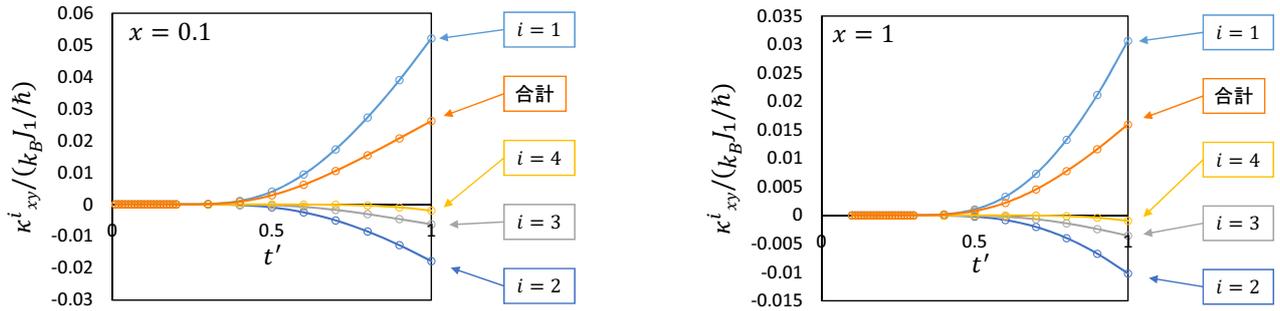


図 4.6 マグノン熱ホール伝導度の磁場  $h = h_{c2} + 0.1J_1$  (左図)、 $h_{c2} + J_1$  (右図) における温度依存性。 $t' \equiv k_B T / J_1$ ,  $x \equiv h / J_1 - h_{c2} / J_1$  はそれぞれ温度、磁場に相当する。 $\kappa_{xy}^i$  はマグノン第  $i$  バンドの熱ホール伝導度 ( $i = 1, 2, 3, 4$ )、橙色の曲線はその合計である。

とが分かる。これは温度を上げると熱ホール伝導度を決める要素の一つである  $c_2(\rho)$  によって、高エネルギー側のベリー曲率も熱ホール伝導度に寄与できるようになるためである。このとき、マグノン、マグノンペアともに各バンドにおいて低エネルギー領域と高エネルギー領域とでおおむね同符号のベリー曲率を持つために、高温側で熱ホール伝導度が増大する。次に、臨界磁場近傍におけるマグノンペアの第1バンドについて、ごく低温で温度に対して非単調な振る舞いが現れている (図 4.7 の左図挿入図)。これはマグノンペアのバンド構造とベリー曲率の波数依存性に起因する。マグノンペア第1バンドはバンドの底に対応する原点近傍で非常に小さな正のベリー曲率を持ち、その他の波数領域では負の値を持つ。そのためごく低温では原点近傍の正のベリー曲率が熱ホール伝導度を決め、マグノンペア第1バンドの熱ホール伝導度温度依存性に非単調な振る舞いを生じさせている。ごく低温領域を拡大したこの挿入図ではマグノンペア第1バンドの熱ホール伝導度の曲線とマグノンペア全体の熱ホール伝導度の曲線が重なっている。これは、非常に低温であるため、第2バンド以上の熱ホール伝導度がほぼ0となっているためである。ただし、ここで現れるピークは非常に小さな値で、現実の系でこのピークを観測するのは困難である。次に、図 4.6 と図 4.7 において、各バンドの熱ホール伝導度の絶対値に注目すると、マグノン、マグノンペアともに、左図に比べて磁場  $x$  を高くした右図では絶対値が全体的に小さくなっていることが分かる。これは、磁場を高くすると各バンドは高エネルギー側にシフトし、励起されるマグノン及びマグノンペアが減少するためである。最後に、マグノンとマグノンペアの熱ホール伝導度の符号が逆符号であることが分かる。これは  $c_2(\rho)$  が常に正の値をとるため、熱ホール伝導度の符号がベリー曲率によって決まることに起因する。ボソンの統計性から、低温ではマグノン、マグノンペアの熱ホール伝導度はほとんど第1バンドによって決められる。さらに、ブリルアンゾーン全域でマグノン第1バンドは正、マグノンペア第1バンドは (原点近傍を除き) 負のベリー曲率を持つため、それぞれのバンドの熱ホール伝導度は正の値、負の値となる。したがって、マグノン、マグノンペアの全体の熱ホール伝導度もそれぞれ正の値、負の値となる。

実際の系ではマグノンとマグノンペアの両方が低エネルギー励起状態として存在する。したがって、それぞれの熱ホール伝導度の合計が実際の系における熱ホール伝導度となる。図 4.8 に、図 4.6, 図 4.7 で示した、マグノン、マグノンペアの低エネルギー側の4つのバンドから得られる熱ホール伝導度をそれぞれ橙色、緑色の曲線で描き、両者の合計を水色の曲線で表した。左図の  $x = 0.1$  における熱ホール伝導度の温度依存性を見ると、系全体の熱ホール伝導度の符号が温度を上げる過程で変化することが分かる。これ

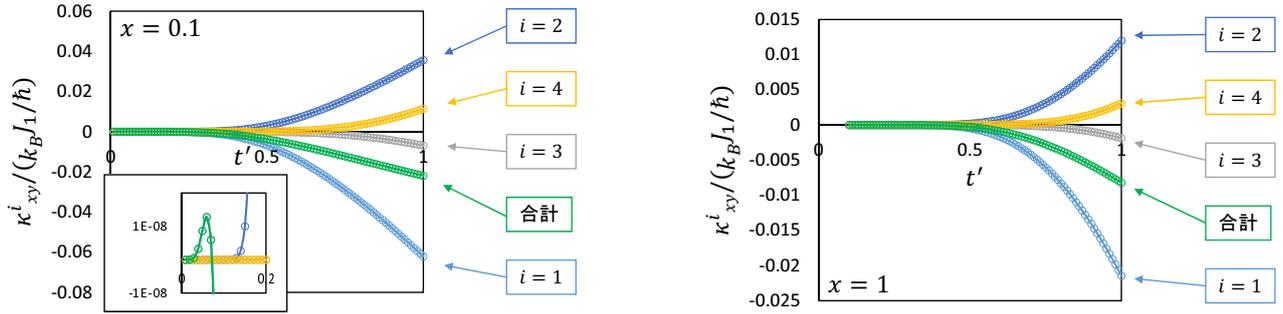


図 4.7 マグノンペア熱ホール伝導度の磁場  $h = h_{c2} + 0.1J_1$  (左図)、 $h_{c2} + J_1$  (右図) における温度依存性。  $t' \equiv k_B T / J_1$ ,  $x \equiv h / J_1 - h_{c2} / J_1$  はそれぞれ温度、磁場に相当する。  $\kappa_{xy}^i$  はマグノンペア第  $i$  バンドの熱ホール伝導度 ( $i = 1, 2, 3, 4$ )、緑色の曲線はその合計である。

は、マグノンとマグノンペアの第 1 バンドが十分離れているため (マグノンとマグノンペアのギャップはそれぞれ  $\min E_1 / J_1 \approx 2.6^{*12}$ ,  $\min E_2 / J_1 = 0.2$ )、低温では、マグノンより低エネルギーであるマグノンペアの熱ホール伝導度が有意となり、一方で、温度を上げていくと徐々にマグノンが励起され、その寄与が増大し、系全体の熱ホール伝導度の符号が反転するというシナリオで説明できる。一方、右図の  $x = 1$  における熱ホール伝導度の温度依存性には、そのような符号反転が現れていない。  $x = 1$  におけるマグノンとマグノンペアのギャップはそれぞれ  $\min E_1 / J_1 \approx 3.6$ ,  $\min E_2 / J_1 = 2$  で与えられる。すなわち、この高磁場ではマグノン第 1 バンドとマグノンペア第 1 バンドが近接しており、かつ、低エネルギー領域のベリー曲率の絶対値はマグノン第 1 バンドの方が大きいため、系全体の熱ホール伝導度に符号反転が起きない。最後に、臨界磁場近傍で起きる熱ホール伝導度の符号反転が実際に観測できる大きさであるかを考察する。図 4.8 の左図から、  $x = 0.1$ ,  $t' = 0.5$  のとき縦軸の値は約  $-0.001$  であることが分かる。このとき、  $\text{ZnCr}_2\text{O}_4$  における値に換算すると  $3.2 \times 10^{-4} [\text{W/Km}]$  となり、すでに熱ホール伝導度の検出に成功している  $\text{Lu}_2\text{V}_2\text{O}_7$  における熱ホール伝導度が  $5.0 \times 10^{-4} [\text{W/Km}]$  程度であったことから、この系の熱ホール伝導度は十分観測にかかり得ることが分かる。しかしながら、このときの実際の磁場、温度は約  $450 [\text{T}]$ ,  $26 [\text{K}]$  であり、  $100 [\text{T}]$  を超える超強磁場を用いた実験が必要になる<sup>\*13</sup>。一方、飽和磁場の小さい  $\text{HgCr}_2\text{O}_4$  では、磁場と温度は約  $41 [\text{T}]$ ,  $2.4 [\text{K}]$  となるが、熱ホール伝導度は  $2.8 \times 10^{-5} [\text{W/Km}]$  となり、検出できるほど十分大きくない。ゆえに、実際にこの符号反転を観測できるか否かは微妙な状況と言える。一方、高温側での熱ホール伝導度 ( $t' = 1$ ,  $x = 0.1$  のときの  $4.3 \times 10^{-3}$ ) については、  $\text{HgCr}_2\text{O}_4$  において、約  $4.7 [\text{K}]$ ,  $41 [\text{T}]$  で熱ホール伝導度  $1.2 \times 10^{-4} [\text{W/Km}]$  となり、十分検出可能であると期待できる。

図 4.9, 図 4.10 はそれぞれマグノン、マグノンペアの第  $i$  バンドの熱ホール伝導度  $\kappa_{xy}^i$  ( $i = 1, 2, 3, 4$ ) と

\*12 マグノンギャップは  $h_{c2} / J_1 - h_{c1} / J_1 + x$  で与えられる。  $J_2 / J_1 = -0.2$ ,  $D / J_1 = 0.1$  のとき、  $h_{c1} \approx 2.6$  である。

\*13 磁場の変換について、  $H = h / g\mu_B$ ,  $h = h_{c2} + xJ_1$ ,  $h_{c2} / J_1 = 11.4$  であるから、

$$H = \frac{(11.4 + 0.1) \times 4.5 \times 10^{-3} \times 1.6 \times 10^{-22}}{2 \times 9.27 \times 10^{-24}} \approx 4.5 \times 10^2. \quad (4.7)$$

温度の変換について、  $T = t' J_1 / k_B$  であるから、

$$T = \frac{0.5 \times 4.5 \times 10^{-3} \times 1.6 \times 10^{-22}}{1.38 \times 10^{-23}} \approx 26. \quad (4.8)$$

ここで、ボルツマン定数  $k_B$ , ボーア磁子  $\mu_B$  は  $k_B = 1.38 \times 10^{-23} [\text{J/K}]$ ,  $\mu_B = 9.27 \times 10^{-24} [\text{J/T}]$  である。また、  $g = 2$  としている。

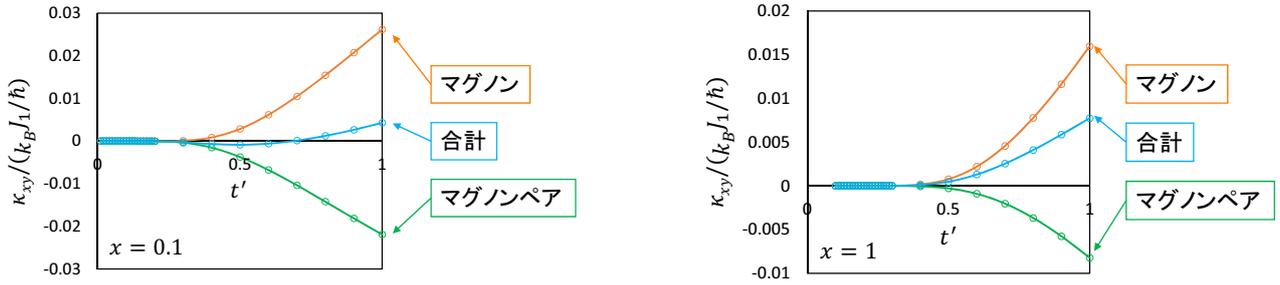


図4.8 マグノン熱ホール伝導度とマグノンペア熱ホール伝導度の磁場  $h = h_{c2} + 0.1J_1$  (左図)、 $h_{c2} + J_1$  (右図) における温度依存性。  $t' \equiv k_B T / J_1$ ,  $x \equiv h / J_1 - h_{c2} / J_1$  はそれぞれ温度、磁場に相当する。橙色と緑色の曲線はそれぞれマグノン、マグノンペアの熱ホール伝導度を表し、水色の曲線はそれらの合計である。

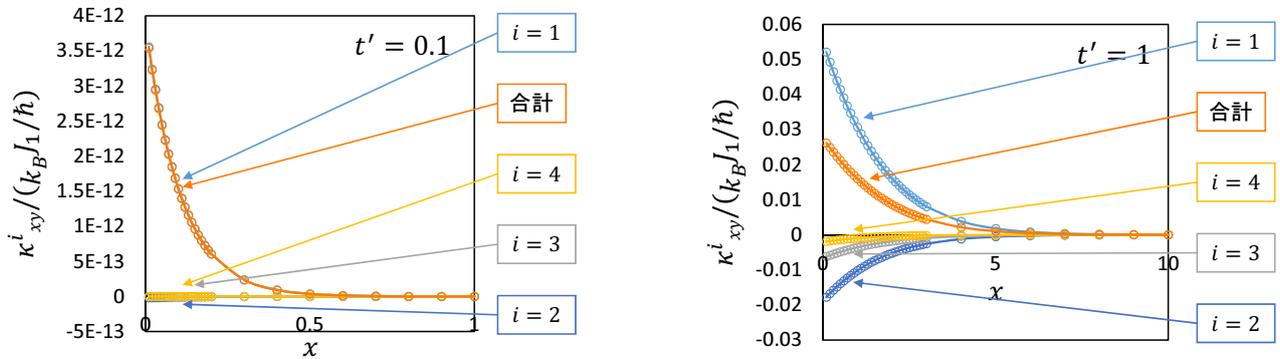


図4.9 マグノン熱ホール伝導度の温度  $t' = 0.1$  (左図)、 $t' = 1$  (右図) における磁場依存性。  $t' \equiv k_B T / J_1$ ,  $x \equiv h / J_1 - h_{c2} / J_1$  はそれぞれ温度、磁場に相当する。  $\kappa_{xy}^i$  は第  $i$  バンドの熱ホール伝導度 ( $i = 1, 2, 3, 4$ )、橙色の曲線はその合計である。

その合計について磁場依存性を示している。磁場依存性から得られる知見を3点述べる。まず、 $x$  を小さくし、飽和磁場に近づけるにつれて熱ホール伝導度の値が大きくなっていることが分かる。これは飽和磁場近傍であるほどマグノン、マグノンペアのエネルギーが小さくなりマグノン及びマグノンペアの励起数が増大するためである。次に、左図の  $t' = 0.1$  と右図の  $t' = 1$  における磁場依存性を見比べると、マグノン、マグノンペアともに右図の  $t' = 1$  における熱ホール伝導度の絶対値の方が大きくなっている。これは上の温度依存性での議論と同様に、励起される準粒子の数による効果である。最後に、マグノンとマグノンペアそれぞれの合計の熱ホール伝導度が逆符号になっている。これも上述した通り、マグノン、マグノンペアの熱ホール伝導度を決定する主なバンドが第1バンドであり、それらのバンドのベリー曲率が逆符号であることに起因する。

実際の系における熱ホール伝導度の磁場依存性を考える。図4.11に、マグノンとマグノンペアの熱ホール伝導度とその合計をそれぞれ橙色、緑色、水色の曲線で表した。左図の  $t' = 0.1$  における磁場依存性を見ると、マグノンによる熱ホール伝導度はほぼ0であり、マグノンペアの存在によって有限の熱ホール伝導度が現れていることが分かる。また、右図の  $t' = 1$  における磁場依存性を見ると、マグノンとマグノンペアの熱ホール伝導度が逆符号であることと、磁場に対する変化率が異なることに起因して、系全体の熱ホール伝導度に非単調な振る舞いが現れている。この振る舞いは理論・実験の先行研究にあるパイロクロア強磁性体における結果とは定性的に異なる振る舞いである。これらの結果が、実際の系で観測可能

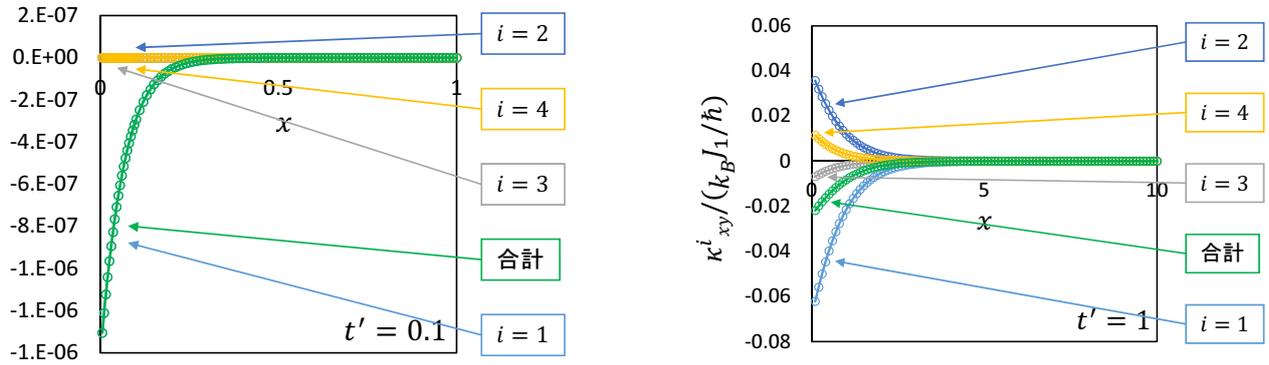


図 4.10 マグノンペア熱ホール伝導度の温度  $t' = 0.1$  (左図)、 $t' = 1$  (右図) における磁場依存性。 $t' \equiv k_B T / J_1$ ,  $x \equiv h / J_1 - h_{c2} / J_1$  はそれぞれ温度、磁場に相当する。 $\kappa_{xy}^i$  は第  $i$  バンドの熱ホール伝導度 ( $i = 1, 2, 3, 4$ )、緑色の曲線はその合計である。

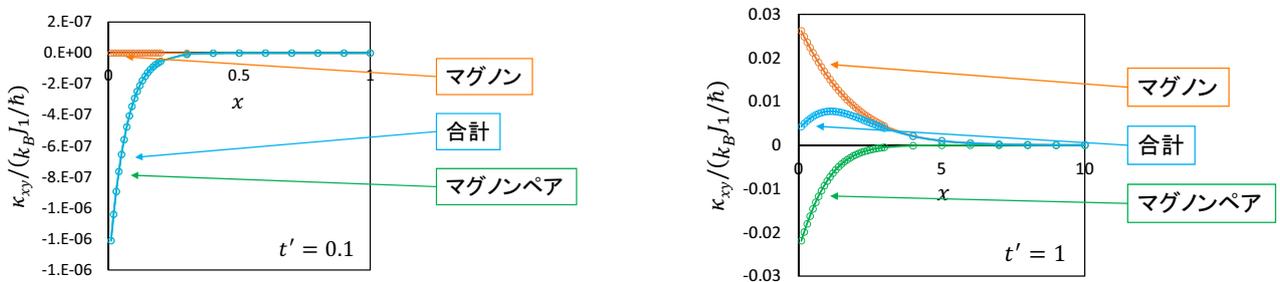


図 4.11 マグノン熱ホール伝導度とマグノンペア熱ホール伝導度の温度  $t' = 0.1$  (左図)、 $t' = 1$  (右図) における磁場温度依存性。 $t' \equiv k_B T / J_1$ ,  $x \equiv h / J_1 - h_{c2} / J_1$  はそれぞれ温度、磁場に相当する。橙色と緑色の曲線はそれぞれマグノン、マグノンペアの熱ホール伝導度を表し、水色の曲線はそれらの合計である。

かどうかについて考察する。まず、 $t' = 0.1$  での磁場依存性について、上の温度依存性で議論した通り、熱ホール伝導度は非常に小さくクロムスピネル酸化物で実際に観測することは困難である。次に  $t' = 1$  での磁場依存性について、 $x = 1$  で縦軸は  $0.0077$  である。この熱ホール伝導度の値は、 $\text{ZnCr}_2\text{O}_4$  では約  $2.5 \times 10^{-3} [\text{W/Km}]$ ,  $\text{HgCr}_2\text{O}_4$  では約  $2.2 \times 10^{-4} [\text{W/Km}]$  となる。これらの値は実験の先行研究から十分検出可能な大きさであると期待できる。一方で、 $x = 1$  と  $t' = 1$  を実際の系における磁場と温度に換算すると、 $\text{ZnCr}_2\text{O}_4$  では約  $480 [\text{T}]$ , 約  $52 [\text{K}]$ ,  $\text{HgCr}_2\text{O}_4$  では約  $44 [\text{T}]$ , 約  $4.7 [\text{K}]$  となる。温度依存性と同様飽和磁場が大きい  $\text{ZnCr}_2\text{O}_4$  では、超強磁場が必要となるが、 $\text{HgCr}_2\text{O}_4$  では強磁場下での熱ホール伝導度の測定が可能になれば、熱ホール伝導度の磁場依存性に現れるピーク構造が観測できることが期待できる。

以上の結果をまとめると、マグノンペアを考慮することで本質的に系全体の熱ホール伝導度の振る舞いに変化することが明らかになった。特に、ある温度領域では系全体の熱ホール伝導度の磁場依存性に非単調な振る舞いが現れることを明らかにした。この振る舞いは理論・実験で先行研究されているパイロクロア強磁性体には現れない新しい結果であり、強磁場での熱ホール伝導度の測定という技術的な問題を含んではいるものの、実際にクロムスピネル酸化物において観測されることが期待される。

最後に、マグノンバンドとマグノンペアバンドの混成の効果について議論する。前章で述べた通り、磁場に垂直な DM ベクトルを持つ DM 相互作用は、系の  $U(1)$  スピン回転対称性を破り、マグノンとマグ

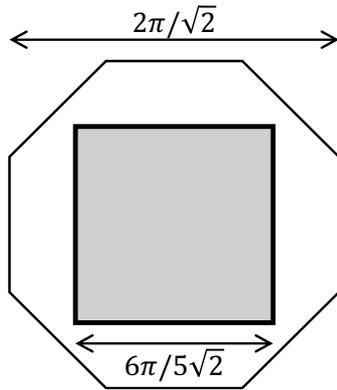


図 4.12 計算に取り入れる波数空間（灰色の領域）。八角形は元のブリルアンゾーンの境界を示す。

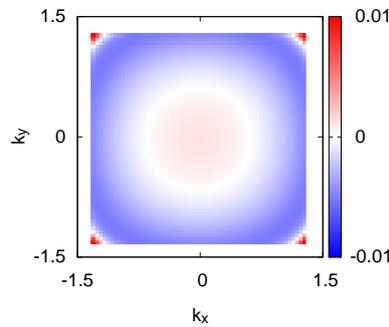


図 4.13  $h = h_{c2} + J_1$  における混成第 1 バンドのベリー曲率 ( $k_z = 0$  面)

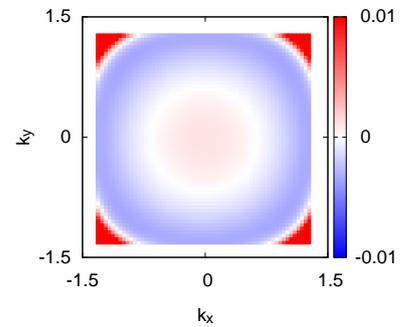


図 4.14  $h = h_{c2} + 1.2J_1$  における混成第 1 バンドのベリー曲率 ( $k_z = 0$  面)

ノンペアの間に混成をもたらす。これによってバンド構造にはレベル反発が生じ、レベル反発が現れた波数近傍ではベリー曲率が増大する。レベル反発を起こした 2 つのバンドは逆符号のベリー曲率を持ち、一見熱ホール伝導度には寄与しないように思われるが、 $c_2(\rho)$  の効果により、上下のバンドがそれぞれ熱ホール伝導度にどれだけ寄与するかは自明ではない。レベル反発による熱ホール伝導度への寄与を見るために、混成を考えたハミルトニアンから熱ホール伝導度を解析する。以下では、低エネルギーバンド（マグノン第 1, 2 バンド、マグノンペア第 1 バンド）のみが熱ホール伝導度に寄与する低温領域について計算する。バンドの底は  $\mathbf{k} = 0$  に存在するため、十分低温では図 4.12 に示した  $\mathbf{k} = 0$  を中心とする一辺  $6\pi/(5\sqrt{2})$  の立方体内部に限定して考えてよい<sup>\*14</sup>。図 4.12 では  $k_z = 0$  の断面を示しており、八角形は図 3.6 のブリルアンゾーン、正方形がここで考える波数空間の境界を表している。この立方体を  $k_x, k_y, k_z$  方向にそれぞれ 60 分割し、 $60 \times 60 \times 60$  点におけるベリー曲率を求めた。図 4.13, 図 4.14 にそれぞれ磁場  $h = h_{c2} + J_1, h = h_{c2} + 1.2J_1$  におけるベリー曲率を示している。角に大きな正のベリー曲率（濃い赤色の領域）が現れているが、これがレベル反発の効果で大きくなったベリー曲率である。両者のベリー曲率を見比べると、磁場を大きくするとより内側（小さい波数）でレベル反発が起こることが分かる。ただし、これ以上磁場を大きくすると、数値計算上の問題が生じる。

図 4.15 に、ブリルアンゾーン全域を取り入れた熱ホール伝導度の結果と、図 4.12 の部分的なブリルアンゾーンのみを考慮して計算した熱ホール伝導度の結果を示す。ブリルアンゾーン全域で計算した結果を塗りつぶしたマーカー付きの曲線で、部分的なブリルアンゾーンで計算した結果を白抜きマーカー付きの曲線で表している。橙色と緑色はそれぞれマグノン、マグノンペアの結果に対応する。和をとる波数空間を制限するために絶対値は小さくなるが、符号やマグノンとマグノンペアの熱ホール伝導度の大小関係

\*14 このように波数空間を制限することで以下の技術的な問題を回避することができる。混成を考慮したハミルトニアンから得られる分散関係には、同一  $k_z$  面内の  $X_1$  点と  $X_2$  点（図 3.6）を結ぶ線上以外にも縮退線が現れる（図 3.13）。また、高エネルギー側にもそのような縮退線が現れる。この縮退線が現れる波数は磁場に依存し、ベリー曲率を数値的に見積もる際に取り扱いが難しい。したがって、本論文ではこの縮退線を避けるために、小さな波数領域かつ低エネルギー領域を考える。

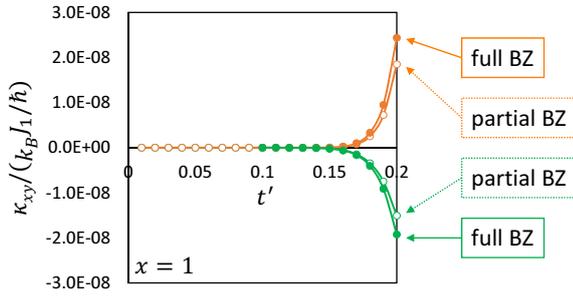


図 4.15  $x = 1$  における、ブリルアンゾーン全域で計算した熱ホール伝導度（塗りつぶしたマーカー付きの曲線）と部分的なブリルアンゾーンで計算した熱ホール伝導度（白抜きマーカー付きの曲線）の温度依存性。橙色はマグノン、緑色はマグノンペアの熱ホール伝導度に対応する。

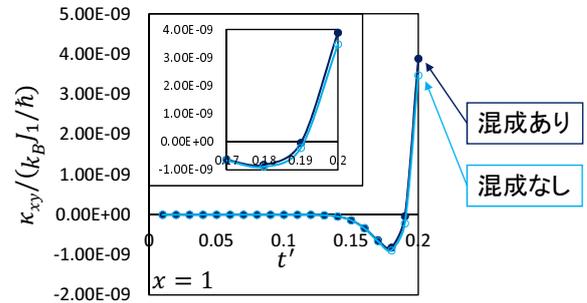


図 4.16  $x = 1$  における、部分的なブリルアンゾーンで計算した熱ホール伝導度の温度依存性。水色が混成を無視したもの、紺色が混成を考慮したものである。

など、定性的な振る舞いは変わらないことが分かる。このとき、部分的なブリルアンゾーンにおいて、混成を考慮した（すなわち前章で示した行列  $\mathcal{M}^{\text{hybrid}}$  を取り入れて）熱ホール伝導度を計算すると、図 4.16 のような結果が得られる。水色の曲線は部分的なブリルアンゾーンで混成の効果を見逃した（すなわち  $\mathcal{M}^{\text{hybrid}} = 0$  とした）結果であり、図 4.15 の白抜きの橙色の曲線と緑色の曲線を足したものである。紺色の曲線は混成を考慮して計算した結果である。両者ともに、低エネルギー側の 3 つのバンドまでを計算している。この結果から、確かに混成を考慮するものとししないものとで熱ホール伝導度の結果は変わることが分かる。しかしながら、定性的な振る舞いは変わらず、値の変化も  $t' = 0.2$  のとき、混成を考慮しないものよりも約 1.1 倍になるだけである。

以上の結果から、少なくともここで考える低温領域では混成の効果は大きくない。しかしながら、これらの我々の解析から、パイロクロア磁性体において、マグノンペアがマグノンよりも低エネルギー励起状態として存在するとき、マグノンとマグノンペアが混在する系全体の熱ホール伝導度はマグノンのみを考慮したもの比べて振る舞いが大きく変わる温度、磁場領域があるということが明らかになったことを強調したい。

## 4.2 弱く結合した $S = 1/2$ フラストレート zigzag スピン鎖

弱く結合した  $S = 1/2$  フラストレート zigzag スピン鎖で現れるマグノン、マグノンペアのベリー曲率を求める。この系は 2 次元系であり、ベリー曲率とともにチャーン数も計算した。Fukui らの方法を用いるうえで、 $\pi \times 2\pi$  のブリルアンゾーンを  $100 \times 100$  に分割する。DM 相互作用がないとき、マグノン、マグノンペアバンドのベリー曲率は 0 となる。一方、DM 相互作用がある場合のマグノン、マグノンペアバンドのベリー曲率を計算すると、パイロクロア系と同様に有意なベリー曲率が現れことが明らかになった。図 4.17 に、 $J_1/J_2 = -0.2$ ,  $J_3/J_2 = 0$ ,  $J_4/J_2 = 0.05$ ,  $D_{\parallel}^z/J_2 = D_{\perp}^z/J_2 = D_x^z/J_2 = 0.1$ ,  $D_{\parallel}^x/J_2 = D_{\perp}^x/J_2 = 0$ ,  $h/J_2 = 0.72$  における (a) マグノンペア第 1 バンド、(b) マグノン第 1 バンドのベリー曲率を示した。左図はこのときの  $k_x = 0$  における  $k_y$  方向（鎖方向）の分散関係を示している。橙色はマグノンバンド、緑色は

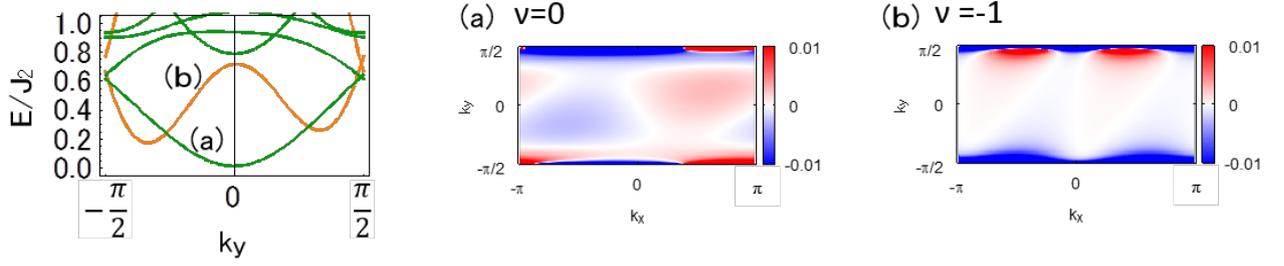


図 4.17 混成を無視した場合の  $k_x = 0$  での分散関係 (左図) とベリー曲率 (右図 2 枚)。緑の曲線はマグノンペアの分散関係、橙の曲線はマグノンの分散関係である。マグノンペアの第 1 バンド、マグノンの第 1 バンドをそれぞれ (a), (b) とし、右にそれらのベリー曲率とチャーン数を示している。マグノンペア第 1 バンドのチャーン数は 0, マグノン第 1 バンドのチャーン数は  $-1$  である。また、各パラメータは  $J_1/J_2 = -0.2$ ,  $J_3/J_2 = 0$ ,  $J_4/J_2 = 0.05$ ,  $D_{\parallel}^z/J_2 = D_{\perp}^z/J_2 = D_{\times}^z/J_2 = 0.1$ ,  $D_{\parallel}^x/J_2 = D_{\perp}^x/J_2 = 0$ ,  $h/J_2 = 0.72$  である。

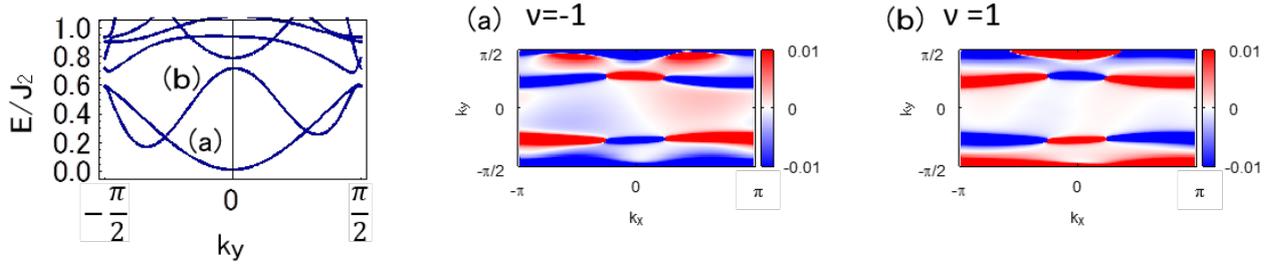


図 4.18 混成を考慮した場合の  $k_x = 0$  での分散関係 (左図) とベリー曲率 (右図 2 枚)。各波数で 1 番目、2 番目に低いエネルギーを持つものを第 1 バンド、第 2 バンドとして、それぞれ (a), (b) と書く。各バンドにおけるベリー曲率とチャーン数を右の 2 つの図に示す。第 1 バンド、第 2 バンドのチャーン数はそれぞれ  $-1, 1$  である。また、各パラメータは  $J_1/J_2 = -0.2$ ,  $J_3/J_2 = 0$ ,  $J_4/J_2 = 0.05$ ,  $D_{\parallel}^z/J_2 = D_{\perp}^z/J_2 = D_{\times}^z/J_2 = 0.1$ ,  $D_{\parallel}^x/J_2 = D_{\perp}^x/J_2 = 0.1$ ,  $h/J_2 = 0.72$  である。

マグノンペアバンドに対応する。また、(a) マグノンペア第 1 バンドと (b) マグノン第 1 バンドのチャーン数はそれぞれ  $0, -1$  である。

さらに混成を考慮すると、すなわち  $\mathcal{M}^{\text{hybrid}} \neq 0$  である系を考えると、分散関係とベリー曲率は図 4.18 のようになる。各パラメータは  $J_1/J_2 = -0.2$ ,  $J_3/J_2 = 0$ ,  $J_4/J_2 = 0.05$ ,  $D_{\parallel}^z/J_2 = D_{\perp}^z/J_2 = D_{\times}^z/J_2 = 0.1$ ,  $D_{\parallel}^x/J_2 = D_{\perp}^x/J_2 = 0.1$ ,  $h/J_2 = 0.72$  である。(a), (b) のバンドはそれぞれ、各波数で最も低いエネルギー、2 番目に低いエネルギーを持つ。前節の結果と同様、横成分の DM ベクトルによって生じたレベル反発が現れる波数近傍に大きなベリー曲率が現れる。また、バンド (a), (b) のチャーン数はマグノンとマグノンペアの混成によって有限の値を持ち、それぞれチャーン数  $-1, 1$  を持つバンドである。

2次元系における熱ホール伝導度は

$$\kappa_{xy} = \frac{k_B^2 T}{\hbar S} \sum_{n, \mathbf{k}} c_2(\rho_n) \Omega_n^z(\mathbf{k}) \quad [\text{W/K}] \quad (4.9)$$

と書ける。前節と同様にして、連続極限をとり数値計算のため離散化を行うと、

$$\kappa_{xy} = \frac{k_B^2 T}{\hbar(2\pi)^2} \sum_{n, \mathbf{k}} c_2(\rho_n) \left[ -\frac{\text{Im}\tilde{F}_{12}^n}{\Delta k_x \Delta k_y} \right] \Delta k_x \Delta k_y \quad [\text{W/K}] \quad (4.10)$$

となる。以下では交換相互作用を  $J_1/J_2 = -2$ ,  $J_3/J_2 = 0$ ,  $J_4/J_2 = 0.05$ , 磁場を  $h/J_2 = 0.72^{*15}$ , 温度を  $t' = k_B T/J_2$  として混成を無視した場合の熱ホール伝導度と混成を考慮した場合の熱ホール伝導度の温度依存性を示す。パイロクロア系と同様、縦軸は  $k_B J_2/\hbar$  でスケールされている。したがって、実際の2次元物質における熱ホール伝導度に換算する場合、 $k_B J_2/\hbar$  をかける必要がある。さらに、パイロクロア系の結果と比較する場合は、3次元系に拡張し単位を  $[\text{W/Km}]$  に統一する必要がある。そのために、zigzag スピン鎖が弱く結合した2次元面を  $z$  方向に積層する。このとき、 $z$  方向の格子定数を  $c$  と書くと、 $k_z$  方向の和は  $\sum_{k_z} \rightarrow (L/2\pi) \int dk_z \rightarrow 1/c$  となる。すなわち、以下で示す熱ホール伝導度の縦軸に  $k_B J_2/c\hbar$  をかけることで、前節のパイロクロア系との比較が可能になる。LiCuVO<sub>4</sub> の  $z$  方向の格子定数  $c = 4.375[\text{\AA}]$  と次近接反強磁性的相互作用  $J_2 = 3.8[\text{meV}]$  [55, 64, 65] を用いる場合、約 0.18 をかければよい<sup>\*16</sup>。

まず、混成を無視した場合 ( $D_{\parallel}^z/J_2 = D_{\perp}^z/J_2 = D_{\times}^z/J_2 = 0.1$ ,  $D_{\parallel}^x/J_2 = D_{\perp}^x/J_2 = 0$ ) の熱ホール伝導度の結果を図 4.19 に示す。橙色の曲線がマグノン第1バンド、緑色の曲線がマグノンペア第1バンドの熱ホール伝導度である。マグノンバンドのチャーン数が  $-1$ , マグノンペアバンドのチャーン数が  $0$  であることと対応して、マグノンバンドの熱ホール伝導度は負の値、マグノンペアバンドの熱ホール伝導度はほぼ  $0$  である。これは、マグノンペアバンドが有限の熱ホール伝導度を示したパイロクロア系とは異なる結果である。一方で、温度を上げると熱ホール伝導度が大きくなる振る舞いは、ボソンの統計性に起因するものであり、zigzag スピン鎖系においても同様である。また、ごく低温でマグノンペアの熱ホール伝導度の符号が反転しているが、ごく低温ではバンドの底のベリー曲率のみが反映するためにこのような符号の反転が起きている。

次に、混成を考慮した場合 ( $D_{\parallel}^z/J_2 = D_{\perp}^z/J_2 = D_{\times}^z/J_2 = D_{\parallel}^x/J_2 = D_{\perp}^x/J_2 = 0.1$ ) の熱ホール伝導度の結果を図 4.20 に示す。塗りつぶしたマーカー付きの曲線が第1バンド、白抜きマーカー付きの曲線が第2バンドの熱ホール伝導度である。混成第1バンドと第2バンドのチャーン数がそれぞれ  $-1, 1$  であることに対応して、それぞれの熱ホール伝導度は負、正の値を持つ。さらに興味深いことに、マグノンとマグノンペアの第1バンドから形成されるこれら2枚のバンドの熱ホール伝導度は、混成を無視した場合と対照的に同程度の絶対値を持つ。これは、混成を考慮したことでどちらのバンドも有限のチャーン数を持ったためであると考えられる。

最後に以上の結果を図 4.21 で比較する。まず、混成を無視した場合の系全体の熱ホール伝導度 (水色の曲線) は、マグノンによる熱ホール伝導度とほぼ一致する。これは上述した通り、マグノンペアの熱ホール伝導度が非常に小さいためである。一方、混成を考慮した場合の系全体の熱ホール伝導度 (紺色の曲線) は、混成を無視した場合と大きく異なる挙動を示している。まず、非常に低温領域にシヨルダ構造が現れており、マグノンのみを考えた場合 (橙色) や混成を無視した場合 (水色) ではほぼ  $0$  であった

\*15 この磁場では、マグノンペアのギャップがマグノンのギャップよりも小さい。

\*16

$$\frac{k_B J_2}{c\hbar} = \frac{3.8 \times 10^{-3} \times 1.60 \times 10^{-19}}{4.38 \times 10^{-10}} \times 1.31 \times 10^{11} \approx 0.18 \quad (4.11)$$

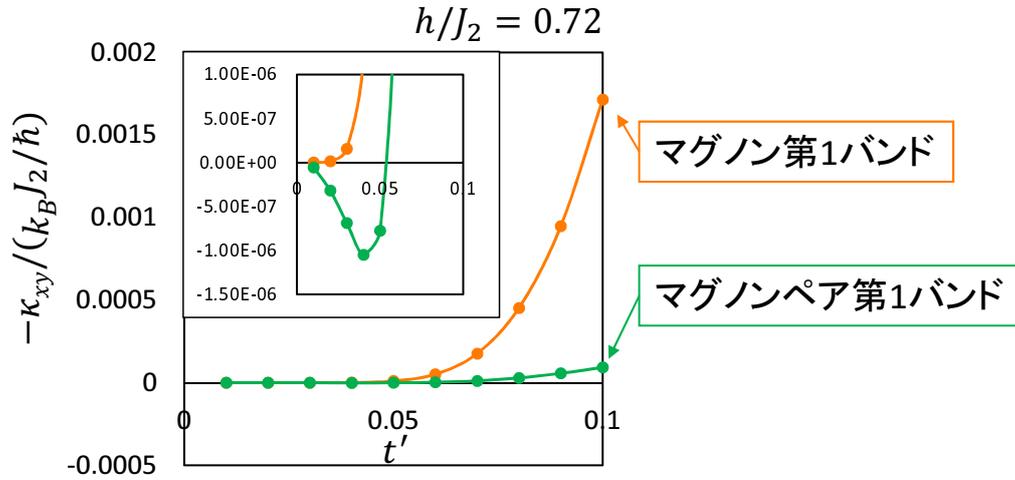


図 4.19 マグノンとマグノンペアそれぞれの熱ホール伝導度の温度依存性。橙色がマグノン、緑色がマグノンペアの熱ホール伝導度である。挿入図は熱ホール伝導度が小さい領域について拡大したもの。

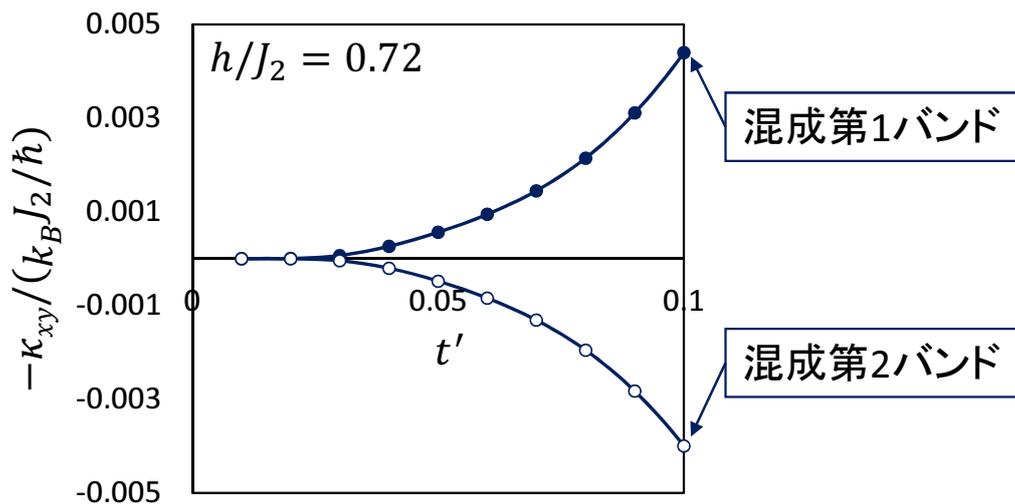


図 4.20 混成第 1 バンドと混成第 2 バンドの熱ホール伝導度の温度依存性。マグノン由来のベリー曲率とマグノンペア由来のベリー曲率が打ち消しあうため、トータルの熱ホール伝導度がマグノンの熱ホール伝導度よりも小さくなる。

熱ホール伝導度が有限の大きさで現れている。このショルダー構造は混成の第 1 バンドと第 2 バンドとで熱ホール伝導度の温度依存性が異なるために現れている。温度依存性を決める要因はバンド構造とベリー曲率の波数依存性であり、バンドが複数あるときはこのようなショルダー構造を持つ温度依存性が生じ得る。次に、温度を上げていくと熱ホール伝導度は大きくなっていくが、混成を考慮した場合、無視した場合に比べてあまり大きくなる。これは、すでに述べた通り、混成第 1 バンドと第 2 バンドが逆符号のチャーン数を持つことに起因する。ただし、2つのバンドが逆符号のチャーン数を持っていても、フェルミオン系と異なり、ボソンの統計性から低エネルギーバンドの方が熱ホール伝導度により強く寄与するために、混成を考慮した系全体の熱ホール伝導度は混成第 1 バンドの熱ホール伝導度と同符号の有意な値を持つ。パイロクロア系とは対照的に、低温領域において混成の効果が大きくあらわれている原因は、マグ

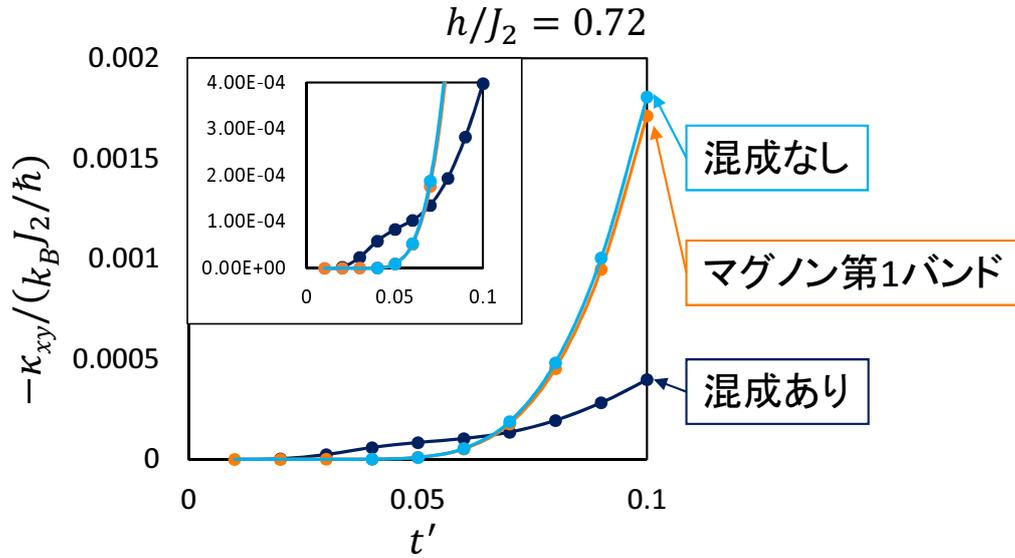


図 4.21 zigzag スピン鎖系の熱ホール伝導度の温度依存性。橙色、水色、紺色の曲線はそれぞれマグノンの熱ホール伝導度、混成を無視した熱ホール伝導度、混成を考慮した熱ホール伝導度である。挿入図は低温領域を拡大したもの。

ノンとマグノンペアギャップが近い値を持つためであると考えられる。

最後に、混成を考慮して得られる熱ホール伝導度の値について考察する。 $h/J_2 = 0.72, t' = k_B T/J_2 = 0.1$  のとき、約  $-4 \times 10^{-4} \times \frac{k_B J_2}{c \hbar}$  [W/Km] ( $c$  は  $z$  方向の格子定数) であり、 $\frac{k_B J_2}{c \hbar}$  を 1 程度にする交換相互作用、格子定数の物質であれば、十分検出可能である。仮に  $J_2 = 10$  [meV],  $c = 2$  [Å] という物質であれば、熱ホール伝導度は  $-4 \times 10^{-4}$  [W/Km] となる<sup>\*17</sup>。このとき温度と磁場は約 12[K], 62[T] である。

\*17

$$\frac{k_B J_2}{c \hbar} = \frac{10 \times 10^{-3} \times 1.60 \times 10^{-19}}{2 \times 10^{-10}} \times 1.31 \times 10^{11} \approx 1.0 \quad (4.12)$$

## 第5章

# まとめと結論

本研究では、フラストレート磁性体の強磁場下飽和磁化状態でしばしば発現するマグノンペア（2つのマグノンの束縛状態）による熱ホール効果の可能性を理論的に考察した。その結果、マグノンのみによる熱ホール伝導度とマグノンペアの存在まで考慮した熱ホール伝導度の振る舞いに違いが現れることを明らかにした。本研究は、マグノンペアが熱ホール伝導度に寄与するという新しい結果を与えている。

本研究の背景には、第1章で述べた通り、電子系におけるトポロジーの有用性に注目が集まっていることやマグノン熱ホール効果の理論が確立されていることなどがある。量子ホール系やトポジカル絶縁体の発見などによって、電子物性研究においてトポロジーの考え方の有用性が広く認識されるようになった。近年、このトポロジーという概念は電子系だけに限らず、磁性の研究分野にも波及している。さらにスピントロニクス発展もあいまって、磁性体における最も代表的な準粒子であるマグノンの輸送現象について活発に議論されている。そのような中で、マグノン熱ホール効果の理論、実験研究が近年急速に発展し、第2章で紹介したように、ボーズ粒子系に対する熱ホール効果の理論が確立している。しかしながら、磁性絶縁体にはマグノンの他にも多様な磁気準粒子が存在し、そのような準粒子のトポジカルな性質を反映した輸送現象も十分期待することができる。本研究で注目するマグノンペアはそのような磁気準粒子の代表格の一つである。このような背景がマグノンペアの熱ホール効果を本研究で取り上げた理由である。

本研究ではマグノンペアが現れるフラストレート磁性体として、双2次スピン相互作用を有するパイロクロア反強磁性体（以下、パイロクロア系）と、弱く結合した  $S = 1/2$  フラストレート zigzag スピン鎖（以下、zigzag スピン鎖系）の2つの系を採り上げる。これらの系は強磁場下飽和磁化状態において、マグノンに加えてマグノンペアも低エネルギー励起状態として現れることが知られており、飽和磁化相直下にマグノンペアの凝縮相であるスピンネマティック相が現れる系として盛んに研究されている。

我々はマグノンペア凝縮相に隣接する強磁場下飽和磁化相におけるマグノンとマグノンペアの励起状態に注目する。このマグノンとマグノンペアが混在する上記2つの系において、最近の研究で定式化されたボーズ粒子系の熱ホール効果の理論を応用し、マグノンとマグノンペアの熱ホール伝導度を計算した。特に磁性体の熱ホール効果において、これまで考察されてこなかったマグノンペアの寄与に注目し解析を行った。熱ホール伝導度を計算する上で重要な要素である分散関係とベリー曲率をそれぞれ第3章と第4章で示した。その結果、マグノンに加えてマグノンペアも熱ホール伝導度に有意な寄与を与えることを明らかにした。以下に、我々が得た重要な知見について5点にまとめる。

- 先行研究により、一般に DM 相互作用はマグノンに複素数のホッピングを与え、マグノンバンドにベリー曲率をもたらすことが知られている。本研究では新たに、DM 相互作用がマグノンペアのエネルギーバンドにも有意なベリー曲率を与えることを明らかにした。
- $S^z$  方向の  $U(1)$  対称性を破る DM 相互作用が存在する系では、マグノンとマグノンペアバンドのレベル交差点でレベル反発がしばしば発生する。ブリルアンゾーン内のレベル反発点周りでは、一般に反発点上下2つのバンドが逆符号に非常に大きなベリー曲率を持つことが知られている。このようなレベル反発が磁性絶縁体のホール効果（輸送現象）に与える効果について、我々が考えているマグノンとマグノンペアの両者が存在する系ではじめて考察されたことと言える。本研究では、特に zigzag スピン鎖系において、 $U(1)$  対称性を保つ DM 相互作用がある系と  $U(1)$  対称性を破る DM 相互作用を持ちバンド構造にレベル反発が現れる系の2つの系で熱ホール伝導度の温度磁場依存性に大きな違いが現れることを明らかにした。このレベル反発の効果もマグノンペアの熱ホール効果への重要な寄与である。
- 現実的な格子定数や交換相互作用を用いて、熱ホール伝導度の大きさを定量的に見積もった結果、本研究で採り上げたパイロクロア系と zigzag スピン鎖系において、磁場や温度を巧く調整すると、マグノンペアによる熱ホール伝導度が観測可能な値に到達し得ることを明らかにした。
- パイロクロア系における熱ホール効果では、十分低温においてマグノン熱ホール伝導度がほぼ無視でき、一方マグノンペアによる熱ホール伝導度が有意に現れる温度領域が存在することを明らかにした。これはマグノンとマグノンペアのギャップの差が大きく、低温ではマグノンペアが系の主要な準粒子となっているためである。さらに、パイロクロア系におけるマグノンとマグノンペアの熱ホール伝導度が逆符号であることを明らかにした。これにより、熱ホール伝導度の磁場依存性に非単調な振る舞いが現れることを明らかにした。この非単調性は、これまで理論・実験的に研究されてきた強磁性体におけるマグノンの熱ホール効果では見られない性質である。本研究において、マグノンとマグノンペアの両者の効果を定量的に解析することで、マグノンのみによる熱ホール伝導度とは定性的に異なる振る舞いが予言できたとと言える。
- zigzag スピン鎖系における熱ホール効果において、 $U(1)$  対称性を保つ DM 相互作用を持つ（すなわちレベル反発がない）系では、マグノンペアバンドはチャーン数ゼロであり、マグノンバンドはチャーン数  $-1$  を持つことが分かった。その結果、マグノンペアによる熱ホール伝導度は非常に小さく、系の熱ホール伝導度はほとんどマグノンによって決まる。一方  $U(1)$  対称性を破る DM 相互作用が存在し、マグノンとマグノンペアが混成している系では、混成第1バンドと第2バンドは逆符号のチャーン数を持つ。その結果、第1バンドと第2バンドが逆符号の熱ホール伝導度を与え、2者の打ち消し合いにより系全体の熱ホール伝導度が混成なしの場合に比べ非常に小さな値となることを明らかにした。さらに、混成がある場合、第1バンドと第2バンドの熱ホール伝導度の温度依存性の定量的な差異から、低温領域において系全体の熱ホール伝導度にショルダーク構造が現れることを明らかにした。これらの性質も、これまでのマグノンのみによる熱ホール効果の研究では現れていないマグノンとマグノンペア混在系の特徴である。

本研究におけるこれらの熱ホール伝導度の定量的な考察から、パイロクロア系と zigzag スピン鎖系において、通常の単一マグノンだけでなく、マグノンペアまで考慮することが本質的に大切な場合があること

---

を明らかにした。また、マグノンペアはこれまでスピンネマティック秩序の観点から考察されることが主であったが、我々の研究から、最近注目を集めている熱ホール効果という物理現象においても重要な役割を果たすことを初めて明らかにした。さらに、最近著しい発展を続けているスピントロニクス の視点に立つと、マグノンの熱ホール効果はスピン流を伝搬する新しい方法を提供していた。我々の予言するマグノンペアの熱ホール効果は、さらに新しいスピン流輸送方法を提供している、と言える。すなわち、我々の成果は、理学的な視点からだけでなく、工学的（スピントロニクス）な視点からも新しい輸送現象の研究に貢献することが期待できる。



## 付録 A

### ベリー曲率

本節では、ベリー曲率の定義とその物理的解釈について説明する [8, 17]。固体中のある粒子の状態が  $N$  個のパラメータ  $\mathbf{R} = (R^1, R^2, \dots, R^N)$  で書かれるとする。このとき、系のハミルトニアン  $H$  に対する固有状態と固有エネルギーは、 $\mathbf{R}$  を用いて  $|n, \mathbf{R}\rangle, E_n(\mathbf{R})$  と書け、ベリー接続とベリー曲率は以下のように定義される。

$$\text{ベリー接続} : \mathbf{A}_n(\mathbf{R}) = i \langle n, \mathbf{R} | \nabla_{\mathbf{R}} | n, \mathbf{R} \rangle \quad (\text{A.1})$$

$$\text{ベリー曲率} : \boldsymbol{\Omega}_n(\mathbf{R}) = \nabla_{\mathbf{R}} \times \mathbf{A}_n(\mathbf{R}) \quad (\text{A.2})$$

この形から分かるように、ベリー接続とベリー曲率は電磁気学でいうベクトルポテンシャルと磁場に対応する。

次に、 $\mathbf{R}$  が時間依存する場合を考える。 $\mathbf{R}(t)$  が別の固有状態に飛び移らない程度にゆっくりと変化 (断熱変化) するとき、時間依存したシュレディンガー方程式は

$$H |n, t\rangle = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |n, t\rangle \quad (\text{A.3})$$

と書かれる。時刻  $t$  における状態  $|n, t\rangle$  は、ある時刻におけるシュレディンガー方程式の固有状態に位相因子がついた以下のような形で表される。

$$|n, t\rangle = e^{i\gamma(t)} |n, \mathbf{R}(t)\rangle \quad (\text{A.4})$$

この位相因子がどのような形で書かれるのかを示す。時間依存したシュレディンガー方程式 (A.3) の右辺に式 (A.4) を代入すると、

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |n, t\rangle = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \left( e^{i\gamma(t)} |n, \mathbf{R}(t)\rangle \right) \quad (\text{A.5})$$

$$= i\hbar \left( i\dot{\gamma}(t) e^{i\gamma(t)} |n, \mathbf{R}(t)\rangle + e^{i\gamma(t)} \frac{\partial}{\partial t} |n, \mathbf{R}(t)\rangle \right) \quad (\text{A.6})$$

$$= -\hbar\dot{\gamma}(t) e^{i\gamma(t)} |n, \mathbf{R}(t)\rangle + i\hbar e^{i\gamma(t)} \dot{\mathbf{R}}(t) \cdot \nabla_{\mathbf{R}} |n, \mathbf{R}(t)\rangle \quad (\text{A.7})$$

となる。左辺についても同様にして

$$H |n, t\rangle = H e^{i\gamma(t)} |n, \mathbf{R}(t)\rangle \quad (\text{A.8})$$

$$= E_n(\mathbf{R}(t)) e^{i\gamma(t)} |n, \mathbf{R}(t)\rangle \quad (\text{A.9})$$

と書くと、時間依存したシュレディンガー方程式 (A.3) は以下のように書き直せることが分かる。

$$-\hbar\dot{\gamma}(t)e^{i\gamma(t)}|n, \mathbf{R}(t)\rangle + i\hbar e^{i\gamma(t)}\dot{\mathbf{R}}(t) \cdot \nabla_{\mathbf{R}}|n, \mathbf{R}(t)\rangle = E_n(\mathbf{R}(t))e^{i\gamma(t)}|n, \mathbf{R}(t)\rangle \quad (\text{A.10})$$

両辺の左側から  $\langle n, \mathbf{R}(t)|e^{-i\gamma(t)}$  をかけると、

$$-\hbar\dot{\gamma}(t) + i\hbar\dot{\mathbf{R}}(t) \cdot \langle n, \mathbf{R}(t)|\nabla_{\mathbf{R}}|n, \mathbf{R}(t)\rangle = E_n(\mathbf{R}(t)) \quad (\text{A.11})$$

となり、これを变形すると、

$$\dot{\gamma}(t) = i\dot{\mathbf{R}}(t) \cdot \langle n, \mathbf{R}(t)|\nabla_{\mathbf{R}}|n, \mathbf{R}(t)\rangle - \frac{1}{\hbar}E_n(\mathbf{R}(t)) \quad (\text{A.12})$$

となる。すなわち、式 (A.4) に現れる位相因子  $\gamma(t)$  は

$$\gamma(t) = \int_0^t dt' \left\{ i\dot{\mathbf{R}}(t') \cdot \langle n, \mathbf{R}(t')|\nabla_{\mathbf{R}}|n, \mathbf{R}(t')\rangle - \frac{1}{\hbar}E_n(\mathbf{R}(t')) \right\} \quad (\text{A.13})$$

と書くことができる。改めて、状態  $|n, t\rangle$  を書くと、

$$|n, t\rangle = \exp\left[\frac{i}{\hbar} \int_0^t dt' \left\{ i\hbar\dot{\mathbf{R}}(t') \cdot \langle n, \mathbf{R}(t')|\nabla_{\mathbf{R}}|n, \mathbf{R}(t')\rangle - E_n(\mathbf{R}(t')) \right\}\right] |n, \mathbf{R}(t)\rangle \quad (\text{A.14})$$

$$= \exp\left[-\frac{i}{\hbar} \int_0^t dt' E_n(\mathbf{R}(t'))\right] \times \exp\left[i \int_0^t dt' \dot{\mathbf{R}}(t') \cdot i \langle n, \mathbf{R}(t')|\nabla_{\mathbf{R}}|n, \mathbf{R}(t')\rangle\right] |n, \mathbf{R}(t)\rangle \quad (\text{A.15})$$

となる。1 つめの指数項は時間依存したシュレディンガー方程式を解くと必ず出てくるもので、ダイナミカル項と呼ばれる自明な量子位相項である。一方、2 つめの指数項は系の時間発展に伴い、パラメータ  $\mathbf{R}(t)$  が変化することに起因して現れるもので、ベリー位相項と呼ばれる非自明な量子位相項である。

次に境界条件  $\mathbf{R}(T) = \mathbf{R}(0) \equiv \mathbf{R}_0$  があるときのベリー位相項を考える。すなわち位相空間内のあるループ  $C$  に沿って  $\mathbf{R}$  が変化していき、時刻 0 と  $T$  で同じ値  $\mathbf{R}_0$  をとる場合を考える。このときのベリー位相項を  $e^{i\gamma_n[C]}$  と書き、 $\gamma_n[C]$  をベリー位相と呼ぶ。ベリー位相はパラメータ  $\mathbf{R}(t)$  について境界条件を持つので、以下のように、位相空間内の閉じたループ  $C$  における線積分として表現される。

$$\gamma_n[C] \equiv \int_0^T dt \dot{\mathbf{R}}(t) \cdot i \langle n, \mathbf{R}(t)|\nabla_{\mathbf{R}}|n, \mathbf{R}(t)\rangle \quad (\text{A.16})$$

$$= \oint_C d\mathbf{R} \cdot i \langle n, \mathbf{R}(t)|\nabla_{\mathbf{R}}|n, \mathbf{R}(t)\rangle \quad (\text{A.17})$$

すなわちベリー位相は、パラメータ  $\mathbf{R}(t)$  が周期的に変化するとき、その一周分の変化を累積したものと理解される。

ここで、ベリー位相とベリー接続、ベリー曲率の関係を考える。式 (A.17) とベリー接続、ベリー曲率の定義より、ベリー位相は

$$\gamma_n[C] = \oint_C d\mathbf{R} \cdot \mathbf{A}_n(\mathbf{R}) = \int_S d\mathbf{S} \cdot \boldsymbol{\Omega}_n(\mathbf{R}) \quad (\text{A.18})$$

と書くこともできる。2 つめの等号では、ストークスの定理を用いた。ベリー曲率は電磁気学でいう磁場に対応するため、ベリー位相は、位相空間内のループ  $C$  を貫く磁束としても理解できる。また、ベリー位相が有限であることは、「位相空間内のパラメータが時間変化する」あるいは「ベリー曲率、すなわち位相空間内で定義される“磁場”が有限である」ことと等価である。

---

最後に、パラメータ  $\mathbf{R}$  が波数ベクトル  $\mathbf{k}$  であるときを考える。時間反転操作は、複素共役をとり、波数ベクトルを  $\mathbf{k} \rightarrow -\mathbf{k}$  とする。したがって、系の時間反転対称性があるとき  $\Omega_n(\mathbf{k}) = -\Omega_n(-\mathbf{k})$  となる。一方、空間反転操作では  $\mathbf{k} \rightarrow -\mathbf{k}$  とするため、 $\Omega_n(\mathbf{k}) = \Omega_n(-\mathbf{k})$  となる。以上の結果、時間反転対称性と空間反転対称性を同時に満たす系では必ずベリー曲率は 0 になることが分かる。



## 付録 B

### 熱流の定義

熱力学における内部エネルギーは  $U = TS + \mu N$  と書かれる。 $T, S, \mu, N$  はそれぞれ温度、エントロピー、化学ポテンシャル、粒子数である。

熱流とエネルギー流、粒子流（電子系では電流）の関係を考える。まず、温度、エントロピー、化学ポテンシャルが異なる 2 つの系を考える。系 2 から系 1 へ、エネルギーと粒子数がそれぞれ  $dU, dN$  だけ移動するとき、それぞれの系でエントロピーは以下のように変化する。

$$dS_1 = \frac{dU - \mu_1 dN}{T_1}, \quad dS_2 = \frac{(-dU) - \mu_2 (-dN)}{T_2} \quad (\text{B.1})$$

このとき、系全体のエントロピーの変化は

$$dS = dS_1 + dS_2 = (-dU) \left( \frac{1}{T_2} - \frac{1}{T_1} \right) + dN \left( \frac{\mu_2}{T_2} - \frac{\mu_1}{T_1} \right) \quad (\text{B.2})$$

と書くことができる。次に、図 B.1 の右図のように無限個の系を並べ、同様に系  $i+1$  から系  $i$  へエネルギーと粒子数がそれぞれ  $dU_i, dN_i$  だけ移動する場合を考えると、全エントロピーの変化は

$$dS = \sum_i \left[ (-dU_i) \left( \frac{1}{T_{i+1}} - \frac{1}{T_i} \right) + dN_i \left( \frac{\mu_{i+1}}{T_{i+1}} - \frac{\mu_i}{T_i} \right) \right]. \quad (\text{B.3})$$

と書くことができる。この両辺を時間微分すると、

$$\frac{dS}{dt} = \sum_i \left[ \left( -\frac{dU_i}{dt} \right) \left( \frac{1}{T_{i+1}} - \frac{1}{T_i} \right) + \frac{dN_i}{dt} \left( \frac{\mu_{i+1}}{T_{i+1}} - \frac{\mu_i}{T_i} \right) \right] \quad (\text{B.4})$$

となる。ここで、エネルギー流  $j^E$  と粒子流  $j^c$  を

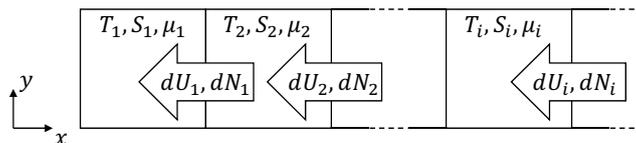


図 B.1 エネルギー流と粒子流によるエントロピーの変化

$$-\frac{dU}{dt} \equiv j^E L, \quad -\frac{dN}{dt} \equiv j^c L \quad (\text{B.5})$$

と定義し、2次元系を考え、エネルギーと粒子は  $-x$  方向に流れている。 $L$  は  $y$  方向の系の長さである。連続極限をとると、

$$\frac{1}{T_{i+1}} - \frac{1}{T_i} \rightarrow \frac{1}{T(x+\Delta x)} - \frac{1}{T(x)} \approx \Delta x \frac{d}{dx} \left( \frac{1}{T} \right) = -\frac{1}{T^2} \frac{d}{dx} T \quad (\text{B.6})$$

$$\frac{\mu_{i+1}}{T_{i+1}} - \frac{\mu_i}{T_i} \rightarrow \frac{\mu(x+\Delta x)}{T(x+\Delta x)} - \frac{\mu(x)}{T(x)} \approx \Delta x \frac{d}{dx} \left( \frac{\mu}{T} \right) = -\frac{\mu}{T^2} \frac{d}{dx} T + \frac{1}{T} \frac{d}{dx} \mu \quad (\text{B.7})$$

$$\frac{dU_i}{dt} \rightarrow \frac{dU(x)}{dt} = -j^E L \quad (\text{B.8})$$

$$\frac{dN_i}{dt} \rightarrow \frac{dN(x)}{dt} = -j^c L \quad (\text{B.9})$$

となり、 $\sum_i f(x_i) \Delta x \rightarrow \int dx f(x)$  より

$$\frac{dS}{dt} = \int dx dy \left[ j^E \frac{d}{dx} \left( \frac{1}{T} \right) - j^c \frac{d}{dx} \left( \frac{\mu}{T} \right) \right]. \quad (\text{B.10})$$

一般の系に拡張すると、

$$\frac{dS}{dt} = \int d^D x \left[ j^E \cdot \nabla \left( \frac{1}{T} \right) - j^c \cdot \nabla \left( \frac{\mu}{T} \right) \right] \quad (\text{B.11})$$

$$= \int d^D x \left[ j^E \cdot \left( -\frac{1}{T^2} \nabla T \right) - j^c \cdot \left( -\frac{\mu}{T^2} \nabla T + \frac{1}{T} \nabla \mu \right) \right]. \quad (\text{B.12})$$

したがって、 $D$ 次元系における全体の熱量の時間変化は

$$\frac{dQ}{dt} = T \frac{dS}{dt} \quad (\text{B.13})$$

$$= \int d^D x \left[ (j^E - \mu j^c) \cdot \left( -\frac{1}{T} \nabla T \right) - j^c \cdot \nabla \mu \right] \quad (\text{B.14})$$

となる。この表式から分かるように、熱量の時間変化は温度勾配によるものと化学ポテンシャルの勾配によるものに分離できる。温度勾配と結合する流れを熱流と定義すると、

$$j^Q = j^E - \mu j^c \quad (\text{B.15})$$

となる。

## 付録 C

# 双 2 次相互作用を持つパイロクロア反強磁性体のマグノンのハミルニアン行列表示

マグノン 1 粒子状態  $|\alpha(\mathbf{k})\rangle$  にハミルトニアンを作用させると、 $J_1$  項については

$$J_1 \sum_{\langle k, l \rangle} \mathbf{S}_k \cdot \mathbf{S}_l |\alpha(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{C.1})$$

$$= J_1 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \sum_{\langle k, l \rangle} \left( \frac{S_k^+ S_l^- + S_k^- S_l^+}{2} + S_k^z S_l^z \right) \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \quad (\text{C.2})$$

$$= J_1 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \sum_{\langle k, l \rangle} \left( \frac{S_k^+ S_l^- + S_k^- S_l^+}{2} + S_k^z S_l^z \right) \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \quad (\text{C.3})$$

$$= J_1 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \sum_{\langle k, l \rangle} (S_k^+ S_l^- + S_k^z S_l^z) \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \quad (\text{C.4})$$

$$= J_1 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \sum_{\langle k, l \rangle} \left( 3\delta_{ik} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_l + \left( \frac{3}{2} - \delta_{ik} \right) \left( \frac{3}{2} - \delta_{il} \right) \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \right) \quad (\text{C.5})$$

$$= J_1 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \frac{3}{2} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \sum_{l=i+\delta_\alpha} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_l + J_1 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \frac{1}{2} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \sum_{k \neq l} \left( \frac{9}{4} - 3\delta_{ik} \right) \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \quad (\text{C.6})$$

$$= J_1 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \frac{3}{2} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \sum_{\delta_\alpha} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i+\delta_\alpha} + J_1 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \frac{1}{2} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \left( \frac{9}{4} 6N - 3 \times 6 \right) \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \quad (\text{C.7})$$

$$= 3J_1 \sum_{\beta(\neq \alpha)} \cos(\mathbf{k} \cdot \delta_{\alpha\beta}) |\beta(\mathbf{k})\rangle + J_1 \left( \frac{27}{4} N - 9 \right) |\alpha(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{C.8})$$

となる。3つめの等号では第 2 項の  $k$  と  $l$  を入れ替えた。 $\delta_\alpha$  は  $\alpha$  副格子上のあるサイトの最近接サイトに向かうベクトルで、パイロクロア格子の場合 6 個ある。 $\delta_{\alpha\beta}$  は単位胞内の  $\alpha$  サイトから  $\beta$  サイトに向かうベクトルで、 $\delta_{\alpha\beta} = -\delta_{\beta\alpha}$  であり、具体的には以下のようにかける (本文中、図 3.7)。

$$\delta_{AB} = \mathbf{e}_1, \quad \delta_{AC} = \mathbf{e}_2, \quad \delta_{AD} = \mathbf{e}_3 \quad (\text{C.9})$$

$$\delta_{BC} = \mathbf{e}_2 - \mathbf{e}_1, \quad \delta_{BD} = \mathbf{e}_3 - \mathbf{e}_1, \quad \delta_{CD} = \mathbf{e}_3 - \mathbf{e}_2 \quad (\text{C.10})$$

$J_2$  項についても同様に、

$$J_2 \sum_{\langle k, l \rangle} (\mathbf{S}_k \cdot \mathbf{S}_l)^2 |\alpha(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{C.11})$$

$$= J_2 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \sum_{\langle k, l \rangle} \mathbf{S}_k \cdot \mathbf{S}_l \left( 3\delta_{ik} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_l + \left( \frac{3}{2} - \delta_{ik} \right) \left( \frac{3}{2} - \delta_{il} \right) \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \right) \quad (\text{C.12})$$

$$= J_2 \frac{1}{\sqrt{N_u}} 3 \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \sum_{\langle k, l \rangle} \delta_{ik} \mathbf{S}_k \cdot \mathbf{S}_l \left| \frac{1}{2} \right\rangle_l \quad (\text{C.13})$$

$$+ J_2 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \sum_{\langle k, l \rangle} \left( \frac{3}{2} - \delta_{ik} \right) \left( \frac{3}{2} - \delta_{il} \right) \mathbf{S}_k \cdot \mathbf{S}_l \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \quad (\text{C.14})$$

$$= J_2 \frac{1}{\sqrt{N_u}} 3 \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \sum_{\langle k, l \rangle} \delta_{ik} \left( \frac{3}{2} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_k + \frac{3}{4} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_l \right) \quad (\text{C.15})$$

$$+ J_2 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \sum_{\langle k, l \rangle} \left( \frac{9}{4} - \frac{3}{2}\delta_{ik} - \frac{3}{2}\delta_{il} \right) \left( 3\delta_{ik} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_l + \left( \frac{9}{4} - \frac{3}{2}\delta_{ik} - \frac{3}{2}\delta_{il} \right) \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \right) \quad (\text{C.16})$$

$$= J_2 \frac{9}{4} \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \sum_{l=i+\delta_\alpha} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i + J_2 \frac{9}{8} \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \sum_{l=i+\delta_\alpha} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_l \quad (\text{C.17})$$

$$+ J_2 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \sum_{\langle k, l \rangle} \left( \frac{9}{4}\delta_{ik} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_l + \left( \frac{9}{4} - \frac{3}{2}\delta_{ik} - \frac{3}{2}\delta_{il} \right)^2 \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \right) \quad (\text{C.18})$$

$$= J_2 \frac{9}{4} 6 |\alpha(\mathbf{k})\rangle + J_2 \frac{9}{4} \sum_{\beta(\neq\alpha)} \cos(\mathbf{k} \cdot \delta_{\alpha\beta}) |\beta(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{C.19})$$

$$+ J_2 \frac{9}{4} \sum_{\beta(\neq\alpha)} \cos(\mathbf{k} \cdot \delta_{\alpha\beta}) |\beta(\mathbf{k})\rangle + J_2 \frac{1}{2} \left( \frac{81}{16} 6N + \frac{9}{4} 6 \times 2 - 2 \frac{27}{8} 6 \times 2 \right) |\alpha(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{C.20})$$

$$= J_2 \frac{9}{2} \sum_{\beta(\neq\alpha)} \cos(\mathbf{k} \cdot \delta_{\alpha\beta}) |\beta(\mathbf{k})\rangle + J_2 \left( \frac{243}{16} N - \frac{27}{2} \right) |\alpha(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{C.21})$$

と求めることができる。

DM 項について、和を書き換えると

$$\sum_{\langle k, l \rangle} \mathbf{D}_{kl} \cdot (\mathbf{S}_k \times \mathbf{S}_l) |\alpha(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{C.22})$$

$$= \frac{1}{2} \sum_{\beta \neq \gamma} \sum_{k \in \beta} \sum_{l=k \pm \delta_{\beta\gamma}} \mathbf{D}_{\beta\gamma} \cdot (\mathbf{S}_k \times \mathbf{S}_l) |\alpha(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{C.23})$$

となるが、マグノン1粒子セクターのみを考える場合は DM ベクトルの  $z$  成分のみ寄与する。したがって磁場を  $(0, 0, 1)$  方向にかけるとき、 $\mathbf{D}_{AB}$ ,  $\mathbf{D}_{CD}$  は寄与しない。DM ベクトルの  $z$  成分のみを考慮して計

算すると、

$$\sum_{\langle k, l \rangle} \mathbf{D}_{kl} \cdot (\mathbf{S}_k \times \mathbf{S}_l) |\alpha(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{C.24})$$

$$= \frac{1}{4i} \sum_{\beta \neq \gamma} \sum_{k \in \beta} \sum_{l=k \pm \boldsymbol{\delta}_{\beta\gamma}} D_{\beta\gamma}^z (S_k^- S_l^+ - S_k^+ S_l^-) |\alpha(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{C.25})$$

$$= \frac{3}{4i} \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \sum_{\beta \neq \gamma} \sum_{k \in \beta} \sum_{l=k \pm \boldsymbol{\delta}_{\beta\gamma}} D_{\beta\gamma}^z \left( \delta_{il} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_k - \delta_{ik} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_l \right) \quad (\text{C.26})$$

$$= \frac{3}{4i} \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \sum_{\beta(\neq \alpha)} \sum_{k \in \beta} \sum_{l=k \pm \boldsymbol{\delta}_{\beta\alpha}} D_{\beta\alpha}^z \left| \frac{1}{2} \right\rangle_k - \frac{3}{4i} \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \sum_{\gamma(\neq \alpha)} \sum_{l=i \pm \boldsymbol{\delta}_{\alpha\gamma}} D_{\alpha\gamma}^z \left| \frac{1}{2} \right\rangle_l \quad (\text{C.27})$$

$$= \frac{3}{2i} \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \sum_{\beta(\neq \alpha)} \sum_{k \in \beta} \sum_{l=k \pm \boldsymbol{\delta}_{\beta\alpha}} D_{\beta\alpha}^z \left| \frac{1}{2} \right\rangle_k \quad (\text{C.28})$$

$$= -3i \sum_{\beta(\neq \alpha)} D_{\beta\alpha}^z \cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}_{\alpha\beta}) |\beta(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{C.29})$$

となる。

以上の結果をまとめると、マグノンのハミルトニアン of 行列要素は以下のように書ける。

$$\langle \beta(\mathbf{k}) | \mathcal{H} | \alpha(\mathbf{k}) \rangle = \begin{cases} \left( 3J_1 + \frac{9}{2}J_2 - 3iD_{\beta\alpha}^z \right) \cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}_{\alpha\beta}) & ; \alpha \neq \beta \\ E_0 - 9J_1 - \frac{27}{2}J_2 + h & ; \alpha = \beta \end{cases} \quad (\text{C.30})$$



## 付録 D

# 双 2 次相互作用を持つパイロクロア反強磁性体のマグノンペアのハミルニアン行列表示

まず、サイト型の基底  $|\alpha\alpha(\mathbf{k})\rangle$  にハミルトニアンを作用させた場合を考える。  $J_1$  項については

$$J_1 \sum_{\langle k,l \rangle} \mathbf{S}_k \cdot \mathbf{S}_l |\alpha\alpha(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{D.1})$$

$$= J_1 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \sum_{\langle k,l \rangle} (S_k^+ S_l^- + S_k^z S_l^z) \left| -\frac{1}{2} \right\rangle_i \quad (\text{D.2})$$

$$= J_1 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \sum_{\langle k,l \rangle} \left( 2\sqrt{3}\delta_{ik} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \left| \frac{1}{2} \right\rangle_l + \left( \frac{3}{2} - 2\delta_{ik} \right) \left( \frac{3}{2} - 2\delta_{il} \right) \left| -\frac{1}{2} \right\rangle_i \right) \quad (\text{D.3})$$

$$= J_1 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \left( \sqrt{3} \sum_{\beta(\neq\alpha)} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i+\delta_{\alpha\beta}} + \sqrt{3} \sum_{\beta(\neq\alpha)} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i-\delta_{\alpha\beta}} + \left( \frac{27}{4}N - 18 \right) \left| -\frac{1}{2} \right\rangle_i \right) \quad (\text{D.4})$$

$$= J_1 \left( \sqrt{3} \sum_{\beta(\neq\alpha)} e^{-i\mathbf{k} \cdot \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}} |\alpha\beta^+(\mathbf{k})\rangle + \sqrt{3} \sum_{\beta(\neq\alpha)} e^{i\mathbf{k} \cdot \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}} |\alpha\beta^-(\mathbf{k})\rangle + \left( \frac{27}{4}N - 18 \right) |\alpha\alpha(\mathbf{k})\rangle \right) \quad (\text{D.5})$$

となる。ここで  $\delta_{\alpha\beta}$  は単位胞内の  $\alpha$  サイトから  $\beta$  サイトに向かうベクトルである。

$J_2$  項についても同様にして、以下のように計算することができる。

$$J_2 \sum_{\langle k, l \rangle} (\mathbf{S}_k \cdot \mathbf{S}_l)^2 |\alpha\alpha(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{D.6})$$

$$= J_2 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \sum_{\langle k, l \rangle} \mathbf{S}_k \cdot \mathbf{S}_l \left( 2\sqrt{3}\delta_{ik} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \left| \frac{1}{2} \right\rangle_l + \left( \frac{3}{2} - 2\delta_{ik} \right) \left( \frac{3}{2} - 2\delta_{il} \right) \left| -\frac{1}{2} \right\rangle_i \right) \quad (\text{D.7})$$

$$= J_2 \frac{1}{\sqrt{N_u}} 2\sqrt{3} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \sum_{\langle k, l \rangle} \delta_{ik} \left( \sqrt{3} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle_l + \sqrt{3} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle_i + \frac{1}{4} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \left| \frac{1}{2} \right\rangle_l \right) \quad (\text{D.8})$$

$$+ J_2 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \sum_{\langle k, l \rangle} \left( \frac{3}{2} - 2\delta_{ik} \right) \left( \frac{3}{2} - 2\delta_{il} \right) \left( 2\sqrt{3}\delta_{ik} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \left| \frac{1}{2} \right\rangle_l + \left( \frac{3}{2} - 2\delta_{ik} \right) \left( \frac{3}{2} - 2\delta_{il} \right) \left| -\frac{1}{2} \right\rangle_i \right) \quad (\text{D.9})$$

$$= 6J_2 \sum_{\beta(\neq\alpha)} \cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}_{\alpha\beta}) |\beta\beta(\mathbf{k})\rangle + 18J_2 |\alpha\alpha(\mathbf{k})\rangle + \frac{\sqrt{3}}{4} J_2 \sum_{\beta(\neq\alpha)} \left( e^{-i\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}_{\alpha\beta}} |\alpha\beta^+(\mathbf{k})\rangle + e^{i\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}_{\alpha\beta}} |\alpha\beta^-(\mathbf{k})\rangle \right) \quad (\text{D.10})$$

$$- \frac{3\sqrt{3}}{4} J_2 \sum_{\beta(\neq\alpha)} \left( e^{-i\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}_{\alpha\beta}} |\alpha\beta^+(\mathbf{k})\rangle + e^{i\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}_{\alpha\beta}} |\alpha\beta^-(\mathbf{k})\rangle \right) + \left( \frac{243}{16} N - 27 \right) J_2 |\alpha\alpha(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{D.11})$$

$$= \left( \frac{243}{16} N - 9 \right) J_2 |\alpha\alpha(\mathbf{k})\rangle + 6J_2 \sum_{\beta(\neq\alpha)} \cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}_{\alpha\beta}) |\beta\beta(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{D.12})$$

$$- \frac{\sqrt{3}}{2} J_2 \sum_{\beta(\neq\alpha)} \left( e^{-i\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}_{\alpha\beta}} |\alpha\beta^+(\mathbf{k})\rangle + e^{i\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}_{\alpha\beta}} |\alpha\beta^-(\mathbf{k})\rangle \right) \quad (\text{D.13})$$

DM 項について、和を書き換えると

$$\sum_{\langle k, l \rangle} \mathbf{D}_{kl} \cdot (\mathbf{S}_k \times \mathbf{S}_l) |\alpha\alpha(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{D.14})$$

$$= \frac{1}{2} \sum_{\beta \neq \gamma} \sum_{k \in \beta} \sum_{l = k \pm \boldsymbol{\delta}_{\beta\gamma}} \mathbf{D}_{\beta\gamma} \cdot (\mathbf{S}_k \times \mathbf{S}_l) |\alpha\alpha(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{D.15})$$

となるが、マグノンペアセクターのみを考える場合、磁場方向である DM ベクトルの  $z$  成分のみが寄与する。

$$\sum_{\langle k, l \rangle} \mathbf{D}_{kl} \cdot (\mathbf{S}_k \times \mathbf{S}_l) |\alpha\alpha(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{D.16})$$

$$= \frac{1}{4i} \sum_{\beta \neq \gamma} \sum_{k \in \beta} \sum_{l = k \pm \boldsymbol{\delta}_{\beta\gamma}} D_{\beta\gamma}^z (S_k^- S_l^+ - S_k^+ S_l^-) |\alpha\alpha(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{D.17})$$

$$= \frac{1}{2i} \sum_{\beta \neq \gamma} \sum_{k \in \beta} \sum_{l = k \pm \boldsymbol{\delta}_{\beta\gamma}} D_{\beta\gamma}^z S_k^- S_l^+ |\alpha\alpha(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{D.18})$$

$$= -\sqrt{3}i \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \sum_{\beta \neq \gamma} \sum_{k \in \beta} \sum_{l = k \pm \boldsymbol{\delta}_{\beta\gamma}} D_{\beta\gamma}^z \delta_{il} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \left| \frac{1}{2} \right\rangle_k \quad (\text{D.19})$$

$$= -\sqrt{3}i \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} \sum_{\beta(\neq\alpha)} \sum_{k = i \pm \boldsymbol{\delta}_{\alpha\beta}} D_{\beta\alpha}^z \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \left| \frac{1}{2} \right\rangle_k \quad (\text{D.20})$$

$$= -\sqrt{3}i \sum_{\beta(\neq\alpha)} D_{\beta\alpha}^z \left( e^{-i\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}_{\alpha\beta}} |\alpha\beta^+(\mathbf{k})\rangle + e^{i\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}_{\alpha\beta}} |\alpha\beta^-(\mathbf{k})\rangle \right) \quad (\text{D.21})$$

次にボンド型の基底  $|\alpha\beta^\pm(\mathbf{k})\rangle$  にハミルトニアンを作用させた場合を考える。 $J_1$  項については以下のよう計算される。

$$J_1 \sum_{\langle k,l \rangle} \mathbf{S}_k \cdot \mathbf{S}_l |\alpha\beta^\pm(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{D.22})$$

$$= J_1 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_i \pm \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2})} \sum_{\langle k,l \rangle} (S_k^+ S_l^- + S_k^z S_l^z) \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\beta}} \quad (\text{D.23})$$

$$= J_1 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_i \pm \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2})} \sum_{\langle k,l \rangle} 2\sqrt{3} (\delta_{ik} \delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, l} + \delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, k} \delta_{il}) \left| -\frac{1}{2} \right\rangle_l \quad (\text{D.24})$$

$$+ J_1 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_i \pm \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2})} \sum_{\langle k,l \rangle} \left( 3\delta_{ik} (1 - \delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, l}) \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\beta}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_l + 3\delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, k} (1 - \delta_{il}) \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \left| \frac{1}{2} \right\rangle_l \right) \quad (\text{D.25})$$

$$+ J_1 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_i \pm \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2})} \sum_{\langle k,l \rangle} \left( \frac{3}{2} - \delta_{ik} - \delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, k} \right) \left( \frac{3}{2} - \delta_{il} - \delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, l} \right) \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\beta}} \quad (\text{D.26})$$

$$= J_1 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_i \pm \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2})} \sqrt{3} \left( \left| -\frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\beta}} + \left| -\frac{1}{2} \right\rangle_i \right) \quad (\text{D.27})$$

$$+ J_1 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_i \pm \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2})} \frac{3}{2} \sum_{\gamma (\neq \alpha, \beta)} \left( \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\beta}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\gamma}} + \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\gamma}} \right) \quad (\text{D.28})$$

$$+ J_1 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_i \pm \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2})} \left( \frac{27}{4} N - 17 \right) \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\beta}} \quad (\text{D.29})$$

$$= \sqrt{3} J_1 \left( e^{\mp i\mathbf{k} \cdot \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}} |\beta\beta(\mathbf{k})\rangle + e^{\pm i\mathbf{k} \cdot \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}} |\alpha\alpha(\mathbf{k})\rangle \right) \quad (\text{D.30})$$

$$+ \frac{3}{2} J_1 \sum_{\gamma (\neq \alpha, \beta)} \left( e^{\mp i\mathbf{k} \cdot \frac{\delta_{\alpha\gamma}}{2}} |\beta\gamma^\pm(\mathbf{k})\rangle + e^{\mp i\mathbf{k} \cdot \frac{\delta_{\beta\gamma}}{2}} |\alpha\gamma^\pm(\mathbf{k})\rangle \right) + \left( \frac{27}{4} N - 17 \right) J_1 |\alpha\beta^\pm(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{D.31})$$

3つめの等号の第2項では次近接サイト上にあるマグノンペア状態を省いた。

$J_2$  項については以下のように計算できる。

$$J_2 \sum_{\langle k, l \rangle} (\mathbf{S}_k \cdot \mathbf{S}_l)^2 |\alpha\beta^\pm(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{D.32})$$

$$= J_2 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_{i \pm \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}})} \sum_{\langle k, l \rangle} 2\sqrt{3} (\delta_{ik} \delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, l} + \delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, k} \delta_{il}) \mathbf{S}_k \cdot \mathbf{S}_l \left| -\frac{1}{2} \right\rangle_l \quad (\text{D.33})$$

$$+ J_2 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_{i \pm \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}})} \sum_{\langle k, l \rangle} \mathbf{S}_k \cdot \mathbf{S}_l \left( 3\delta_{ik} (1 - \delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, l}) \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\beta}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_l + 3\delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, k} (1 - \delta_{il}) \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \left| \frac{1}{2} \right\rangle_l \right) \quad (\text{D.34})$$

$$+ J_2 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_{i \pm \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}})} \sum_{\langle k, l \rangle} \left( \frac{3}{2} - \delta_{ik} - \delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, k} \right) \left( \frac{3}{2} - \delta_{il} - \delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, l} \right) \mathbf{S}_k \cdot \mathbf{S}_l \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\beta}} \quad (\text{D.35})$$

$$= 2\sqrt{3}J_2 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_{i \pm \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}})} \sum_{\langle k, l \rangle} (\delta_{ik} \delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, l} + \delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, k} \delta_{il}) \left( \sqrt{3} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_k \left| \frac{1}{2} \right\rangle_l - \frac{3}{4} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle_l \right) \quad (\text{D.36})$$

$$+ 3J_2 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_{i \pm \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}})} \sum_{\langle k, l \rangle} \delta_{ik} (1 - \delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, l}) \left( \frac{3}{2} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\beta}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_k + \frac{3}{4} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\beta}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_l \right) \quad (\text{D.37})$$

$$+ 3J_2 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_{i \pm \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}})} \sum_{\langle k, l \rangle} \delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, k} (1 - \delta_{il}) \left( \frac{3}{2} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \left| \frac{1}{2} \right\rangle_k + \frac{3}{4} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \left| \frac{1}{2} \right\rangle_l \right) \quad (\text{D.38})$$

$$+ J_2 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_{i \pm \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}})} \sum_{\langle k, l \rangle} \left( \frac{3}{2} - \delta_{ik} - \delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, k} \right) \left( \frac{3}{2} - \delta_{il} - \delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, l} \right) \quad (\text{D.39})$$

$$\times \left\{ 2\sqrt{3} (\delta_{ik} \delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, l} + \delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, k} \delta_{il}) \left| -\frac{1}{2} \right\rangle_l \right. \quad (\text{D.40})$$

$$\left. + \left( 3\delta_{ik} (1 - \delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, l}) \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\beta}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_l + 3\delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, k} (1 - \delta_{il}) \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \left| \frac{1}{2} \right\rangle_l \right) \right. \quad (\text{D.41})$$

$$\left. + \left( \frac{3}{2} - \delta_{ik} - \delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, k} \right) \left( \frac{3}{2} - \delta_{il} - \delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, l} \right) \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\beta}} \right\} \quad (\text{D.42})$$

$$= 2\sqrt{3}J_2 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_{i \pm \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}})} \left( \sqrt{3} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\beta}} - \frac{3}{8} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle_i - \frac{3}{8} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\beta}} \right) \quad (\text{D.43})$$

$$+ 3J_2 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_{i \pm \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}})} \left( \frac{15}{2} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\beta}} + \frac{3}{8} \sum_{\gamma(\neq\alpha, \beta)} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\beta}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\gamma}} + \frac{3}{8} \sum_{\gamma(\neq\alpha, \beta)} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\gamma}} \right) \quad (\text{D.44})$$

$$+ J_2 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_{i \pm \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}})} \frac{\sqrt{3}}{4} \left( \left| -\frac{1}{2} \right\rangle_i + \left| -\frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\beta}} \right) \quad (\text{D.45})$$

$$+ J_2 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_{i \pm \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}})} \frac{9}{8} \sum_{\gamma(\neq\alpha, \beta)} \left( \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\beta}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\gamma}} + \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\gamma}} \right) \quad (\text{D.46})$$

$$+ J_2 \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_{i \pm \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}})} \left( \frac{243}{16} N - 50 \right) \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\beta}} \quad (\text{D.47})$$

$$= \left( \frac{243}{16} N - \frac{43}{2} \right) J_2 |\alpha\beta^\pm(\mathbf{k})\rangle + \frac{9}{4} J_2 \sum_{\gamma(\neq\alpha, \beta)} \left( e^{\mp i\mathbf{k} \cdot \frac{\delta_{\alpha\gamma}}{2}} |\beta\gamma^\pm(\mathbf{k})\rangle + e^{\mp i\mathbf{k} \cdot \frac{\delta_{\beta\gamma}}{2}} |\alpha\gamma^\pm(\mathbf{k})\rangle \right) \quad (\text{D.48})$$

$$- \frac{\sqrt{3}}{2} J_2 \left( e^{\pm i\mathbf{k} \cdot \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}} |\alpha\alpha(\mathbf{k})\rangle + e^{\mp i\mathbf{k} \cdot \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}} |\beta\beta(\mathbf{k})\rangle \right) \quad (\text{D.49})$$

3つめの等号では次近接サイト上にあるマグノンペア状態を省いた。

DM項については以下のように計算できる。

$$\sum_{\langle k, l \rangle} D_{kl} \cdot (\mathbf{S}_k \times \mathbf{S}_l) |\alpha\beta^\pm(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{D.50})$$

$$= \frac{1}{2i} \sum_{\gamma \neq \eta} \sum_{k \in \gamma} \sum_{l=k+\delta_\gamma} D_{\gamma\eta}^z S_k^- S_l^+ |\alpha\beta^\pm(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{D.51})$$

$$= \frac{1}{2i} \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_{i \pm \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}})} \sum_{\gamma \neq \eta} \sum_{k \in \gamma} \sum_{l=k+\delta_\gamma} D_{\gamma\eta}^z \quad (\text{D.52})$$

$$\times \left\{ \sqrt{3} \delta_{il} \left( 2\delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, k} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\beta}} + \sqrt{3} (1 - \delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, k}) \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\beta}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_k \right) \right. \quad (\text{D.53})$$

$$\left. + \sqrt{3} \delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, l} \left( 2\delta_{ik} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle_i + \sqrt{3} (1 - \delta_{ik}) \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \left| \frac{1}{2} \right\rangle_k \right) \right\} \quad (\text{D.54})$$

$$= \frac{1}{2i} \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_{i \pm \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}})} \quad (\text{D.55})$$

$$\times \left\{ \sqrt{3} \sum_{\gamma (\neq \alpha)} \sum_{k=i \pm \delta_\alpha} D_{\gamma\alpha}^z \left( 2\delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, k} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\beta}} + \sqrt{3} (1 - \delta_{i \pm \delta_{\alpha\beta}, k}) \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\beta}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_k \right) \right. \quad (\text{D.56})$$

$$\left. + \sqrt{3} \sum_{\gamma (\neq \beta)} \sum_{k=i \pm \delta_{\alpha\beta} + \delta_\beta} D_{\gamma\beta}^z \left( 2\delta_{ik} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle_i + \sqrt{3} (1 - \delta_{ik}) \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \left| \frac{1}{2} \right\rangle_k \right) \right\} \quad (\text{D.57})$$

$$= \frac{1}{2i} \frac{1}{\sqrt{N_u}} \sum_{i \in \alpha} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_{i \pm \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}})} \quad (\text{D.58})$$

$$\times \left\{ 2\sqrt{3} D_{\beta\alpha}^z \left| -\frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\beta}} + 3 \sum_{\gamma (\neq \alpha, \beta)} D_{\gamma\alpha}^z \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\beta}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\gamma}} \right. \quad (\text{D.59})$$

$$\left. + 2\sqrt{3} D_{\alpha\beta}^z \left| -\frac{1}{2} \right\rangle_i + 3 \sum_{\gamma (\neq \alpha, \beta)} D_{\gamma\beta}^z \left| \frac{1}{2} \right\rangle_i \left| \frac{1}{2} \right\rangle_{i \pm \delta_{\alpha\gamma}} \right\} \quad (\text{D.60})$$

$$= -i\sqrt{3} D_{\alpha\beta}^z \left( e^{\mp i\mathbf{k} \cdot \frac{\delta_{\beta\alpha}}{2}} |\alpha\alpha(\mathbf{k})\rangle - e^{\mp i\mathbf{k} \cdot \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}} |\beta\beta(\mathbf{k})\rangle \right) \quad (\text{D.61})$$

$$-i\frac{3}{2} \sum_{\gamma (\neq \alpha, \beta)} \left( D_{\gamma\alpha}^z e^{\mp i\mathbf{k} \cdot \frac{\delta_{\alpha\gamma}}{2}} |\beta\gamma^\pm(\mathbf{k})\rangle + D_{\gamma\beta}^z e^{\mp i\mathbf{k} \cdot \frac{\delta_{\beta\gamma}}{2}} |\alpha\gamma^\pm(\mathbf{k})\rangle \right) \quad (\text{D.62})$$

以上の結果をまとめると、マグノンペアのハミルトニアン of 行列要素は以下のように書くことがで

きる。

$$\langle \alpha\alpha(\mathbf{k}) | \mathcal{H} | \alpha\alpha(\mathbf{k}) \rangle = J_1 \left( \frac{27}{4}N - 18 \right) + J_2 \left( \frac{243}{16}N - 9 \right) - h \left( \frac{3}{2}N - 2 \right) \quad (\text{D.63})$$

$$= E_0 - 18J_1 - 9J_2 + 2h \quad (\text{D.64})$$

$$\langle \beta\beta(\mathbf{k}) | \mathcal{H} | \alpha\alpha(\mathbf{k}) \rangle = 6J_2 \cos(\mathbf{k} \cdot \delta_{\alpha\beta}) \quad (\text{D.65})$$

$$\langle \alpha\beta^\pm(\mathbf{k}) | \mathcal{H} | \alpha\alpha(\mathbf{k}) \rangle = \left( \sqrt{3}J_1 - \frac{\sqrt{3}}{2}J_2 + \sqrt{3}iD_{\alpha\beta}^z \right) e^{\mp i\mathbf{k} \cdot \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}} \quad (\text{D.66})$$

$$\langle \alpha\beta^\pm(\mathbf{k}) | \mathcal{H} | \alpha\beta^\pm(\mathbf{k}) \rangle = J_1 \left( \frac{27}{4}N - 17 \right) + J_2 \left( \frac{243}{16}N - \frac{43}{2} \right) - h \left( \frac{3}{2}N - 2 \right) \quad (\text{D.67})$$

$$= E_0 - 17J_1 - \frac{43}{2}J_2 + 2h \quad (\text{D.68})$$

$$\langle \alpha\gamma^\pm(\mathbf{k}) | \mathcal{H} | \alpha\beta^\pm(\mathbf{k}) \rangle = \left( \frac{3}{2}J_1 + \frac{9}{4}J_2 - i\frac{3}{2}D_{\gamma\beta}^z \right) e^{\mp i\mathbf{k} \cdot \frac{\delta_{\beta\gamma}}{2}} \quad (\text{D.69})$$

となる。ただし、 $\alpha, \beta, \gamma$  は互いに異なり、他の行列要素は 0 である。

## 付録 E

# 双 2 次相互作用を持つパイロクロア反強磁性体の DM 相互作用による混成項

マグノン状態  $|\alpha(\mathbf{k})\rangle$  に DM ベクトルの  $x$  成分を作用させると、

$$\sum_{\langle k, l \rangle} D_{kl}^x (S_k^y S_l^z - S_k^z S_l^y) |\alpha(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{E.1})$$

$$= \frac{1}{4i} \sum_{\beta \neq \gamma} \sum_{k \in \beta} \sum_{l = k \pm \delta_{\beta\gamma}} D_{\beta\gamma}^x (S_k^+ S_l^z - S_k^- S_l^z - S_k^z S_l^+ + S_k^z S_l^-) |\alpha(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{E.2})$$

となる。ここで  $\delta_{\beta\gamma}$  は単位胞内の  $\beta$  サイトから  $\gamma$  サイトに向かうベクトルである。パイロクロア格子における DM ベクトルの性質  $\sum_{\beta(\neq\alpha)} \mathbf{D}_{\alpha\beta} = 0$  を用いると、残る項は

$$\frac{1}{4i} \sum_{\beta \neq \gamma} \sum_{k \in \beta} \sum_{l = k \pm \delta_{\beta\gamma}} D_{\beta\gamma}^x (-S_k^- S_l^z + S_k^z S_l^-) |\alpha(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{E.3})$$

$$= \frac{\sqrt{3}}{2i} \sum_{\beta(\neq\alpha)} D_{\beta\alpha}^x \left( e^{-i\mathbf{k} \cdot \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}} |\alpha\beta^+(\mathbf{k})\rangle + e^{i\mathbf{k} \cdot \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}} |\alpha\beta^-(\mathbf{k})\rangle \right) \quad (\text{E.4})$$

となる。同様に DM ベクトルの  $y$  成分についても、

$$\sum_{\langle k, l \rangle} D_{kl}^y (S_k^z S_l^x - S_k^x S_l^z) |\alpha(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{E.5})$$

$$= \frac{1}{4} \sum_{\beta \neq \gamma} \sum_{k \in \beta} \sum_{l = k \pm \delta_{\beta\gamma}} D_{\beta\gamma}^y (S_k^z S_l^+ + S_k^z S_l^- - S_k^+ S_l^z - S_k^- S_l^z) |\alpha(\mathbf{k})\rangle \quad (\text{E.6})$$

$$= \frac{\sqrt{3}}{2} \sum_{\beta(\neq\alpha)} D_{\beta\alpha}^y \left( e^{-i\mathbf{k} \cdot \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}} |\alpha\beta^+(\mathbf{k})\rangle + e^{i\mathbf{k} \cdot \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}} |\alpha\beta^-(\mathbf{k})\rangle \right) \quad (\text{E.7})$$

と書ける。以上の結果をまとめると、混成をもたらすブロック行列  $\mathcal{M}^{\text{hybrid}}$  の行列要素は以下のように書くことができる。

$$\langle \alpha\beta^\pm(\mathbf{k}) | \mathcal{H} | \alpha(\mathbf{k}) \rangle = \frac{\sqrt{3}}{2} (iD_{\alpha\beta}^x - D_{\alpha\beta}^y) e^{\mp i\mathbf{k} \cdot \frac{\delta_{\alpha\beta}}{2}} \quad (\text{E.8})$$



## 付録 F

# 弱く結合した $S = 1/2$ フラストレート zigzag スピン鎖のハミルニアン行列表示

マグノンペアの行列要素のうち対角要素について、計算した結果を以下に示す。

$$\begin{aligned} d_1 &= \langle AB | \mathcal{H} | AB \rangle - E_{\text{FP}} = \langle \overline{AB} | \mathcal{H} | \overline{AB} \rangle - E_{\text{FP}} \\ &= -J_1 - 2J_2 - 4J_3 - 2J_4 + 2h \end{aligned} \quad (\text{F.1})$$

$$\begin{aligned} d_2 &= \langle AA | \mathcal{H} | AA \rangle - E_{\text{FP}} = \langle BB | \mathcal{H} | BB \rangle - E_{\text{FP}} \\ &= -2J_1 - J_2 - 4J_3 - 2J_4 + 2h \end{aligned} \quad (\text{F.2})$$

$$\begin{aligned} d_3 &= \langle AA' | \mathcal{H} | AA' \rangle - E_{\text{FP}} = \langle BB' | \mathcal{H} | BB' \rangle - E_{\text{FP}} \\ &= -2J_1 - 2J_2 - 4J_3 - J_4 + 2h \end{aligned} \quad (\text{F.3})$$

$$\begin{aligned} d_4 &= \langle AB \uparrow | \mathcal{H} | AB \uparrow \rangle - E_{\text{FP}} = \langle \overline{AB} \uparrow | \mathcal{H} | \overline{AB} \uparrow \rangle - E_{\text{FP}} \\ &= \langle AB \downarrow | \mathcal{H} | AB \downarrow \rangle - E_{\text{FP}} = \langle \overline{AB} \downarrow | \mathcal{H} | \overline{AB} \downarrow \rangle - E_{\text{FP}} \\ &= -2J_1 - 2J_2 - 3J_3 - 2J_4 + 2h \end{aligned} \quad (\text{F.4})$$

$$\begin{aligned} d_5 &= \langle AB_2 | \mathcal{H} | AB_2 \rangle - E_{\text{FP}} = \langle \overline{AB}_2 | \mathcal{H} | \overline{AB}_2 \rangle - E_{\text{FP}} \\ &= \langle AA \uparrow | \mathcal{H} | AA \uparrow \rangle - E_{\text{FP}} = \langle BB \uparrow | \mathcal{H} | BB \uparrow \rangle - E_{\text{FP}} \\ &= \langle AA \downarrow | \mathcal{H} | AA \downarrow \rangle - E_{\text{FP}} = \langle BB \downarrow | \mathcal{H} | BB \downarrow \rangle - E_{\text{FP}} \\ &= -2J_1 - 2J_2 - 4J_3 - 2J_4 + 2h \end{aligned} \quad (\text{F.5})$$

非対角要素について、計算した結果を以下に示す。

$$\begin{aligned} H_{12} &= \langle \overline{AB} | \mathcal{H} | AB \rangle = \langle AB | \mathcal{H} | \overline{AB} \rangle \\ &= \langle AB_2 | \mathcal{H} | AB \rangle = \langle AB | \mathcal{H} | AB_2 \rangle = \langle \overline{AB}_2 | \mathcal{H} | \overline{AB} \rangle = \langle \overline{AB} | \mathcal{H} | \overline{AB}_2 \rangle \\ &= \langle AA \uparrow | \mathcal{H} | AA' \rangle = \langle AA' | \mathcal{H} | AA \uparrow \rangle = \langle BB \uparrow | \mathcal{H} | BB' \rangle = \langle BB' | \mathcal{H} | BB \uparrow \rangle \\ &= \langle AA \downarrow | \mathcal{H} | AA' \rangle = \langle AA' | \mathcal{H} | AA \downarrow \rangle = \langle BB \downarrow | \mathcal{H} | BB' \rangle = \langle BB' | \mathcal{H} | BB \downarrow \rangle \\ &= \langle AB \downarrow | \mathcal{H} | AB \uparrow \rangle = \langle AB \uparrow | \mathcal{H} | AB \downarrow \rangle = \langle \overline{AB} \downarrow | \mathcal{H} | \overline{AB} \uparrow \rangle = \langle \overline{AB} \uparrow | \mathcal{H} | \overline{AB} \downarrow \rangle \\ &= J_2 \cos \mathbf{k} \cdot \mathbf{b} \end{aligned} \quad (\text{F.6})$$

$$\begin{aligned}
H_{13} &= \langle AA | \mathcal{H} | AB \rangle = \langle AB | \mathcal{H} | AA \rangle^* = \langle BB | \mathcal{H} | AB \rangle^* = \langle AB | \mathcal{H} | BB \rangle \\
&= \langle \overline{AB}_2 | \mathcal{H} | AA \rangle^* = \langle AA | \mathcal{H} | \overline{AB}_2 \rangle = \langle \overline{AB}_2 | \mathcal{H} | BB \rangle = \langle BB | \mathcal{H} | \overline{AB}_2 \rangle^* \\
&= \langle AB \uparrow | \mathcal{H} | AA' \rangle^* = \langle AA' | \mathcal{H} | AB \uparrow \rangle = \langle \overline{AB} \downarrow | \mathcal{H} | AA' \rangle^* = \langle AA' | \mathcal{H} | \overline{AB} \downarrow \rangle \\
&= \langle AB \uparrow | \mathcal{H} | BB' \rangle = \langle BB' | \mathcal{H} | AB \uparrow \rangle^* = \langle \overline{AB} \downarrow | \mathcal{H} | BB' \rangle = \langle BB' | \mathcal{H} | \overline{AB} \downarrow \rangle^* \\
&= \langle AA \uparrow | \mathcal{H} | \overline{AB} \uparrow \rangle = \langle \overline{AB} \uparrow | \mathcal{H} | AA \uparrow \rangle^* = \langle BB \uparrow | \mathcal{H} | \overline{AB} \uparrow \rangle^* = \langle \overline{AB} \uparrow | \mathcal{H} | BB \uparrow \rangle \\
&= \langle AA \downarrow | \mathcal{H} | AB \downarrow \rangle = \langle AB \downarrow | \mathcal{H} | AA \downarrow \rangle^* = \langle BB \downarrow | \mathcal{H} | AB \downarrow \rangle^* = \langle AB \downarrow | \mathcal{H} | BB \downarrow \rangle \\
&= \frac{1}{2} (J_1 - iD_{\parallel}^z) e^{ik \cdot \frac{b}{2}}
\end{aligned} \tag{F.7}$$

$$\begin{aligned}
H_{15} &= \langle AA' | \mathcal{H} | AB \rangle = \langle AB | \mathcal{H} | AA' \rangle^* = \langle BB' | \mathcal{H} | AB \rangle^* = \langle AB | \mathcal{H} | BB' \rangle \\
&= J_3 e^{-ik \cdot \frac{b}{2}} \cos \mathbf{k} \cdot \frac{\mathbf{a}}{2} + \frac{i}{2} D_{\times}^z e^{ik \cdot \frac{a-b}{2}}
\end{aligned} \tag{F.8}$$

$$\begin{aligned}
H_{25} &= \langle AA' | \mathcal{H} | \overline{AB} \rangle = \langle \overline{AB} | \mathcal{H} | AA' \rangle^* = \langle BB' | \mathcal{H} | \overline{AB} \rangle^* = \langle \overline{AB} | \mathcal{H} | BB' \rangle \\
&= J_3 e^{ik \cdot \frac{b}{2}} \cos \mathbf{k} \cdot \frac{\mathbf{a}}{2}
\end{aligned} \tag{F.9}$$

$$\begin{aligned}
H_{19} &= \langle AB \downarrow | \mathcal{H} | AB \rangle = \langle AB | \mathcal{H} | AB \downarrow \rangle^* = \langle \overline{AB} \uparrow | \mathcal{H} | AB \rangle^* = \langle AB | \mathcal{H} | \overline{AB} \uparrow \rangle \\
&= \langle AB \uparrow | \mathcal{H} | \overline{AB} \rangle = \langle \overline{AB} | \mathcal{H} | AB \uparrow \rangle^* = \langle \overline{AB} \downarrow | \mathcal{H} | \overline{AB} \rangle^* = \langle \overline{AB} | \mathcal{H} | \overline{AB} \downarrow \rangle \\
&= (J_4 - iD_{\perp}^z) \cos \mathbf{k} \cdot \frac{\mathbf{a}}{2}
\end{aligned} \tag{F.10}$$

$$\begin{aligned}
H_{3,13} &= \langle AA \uparrow | \mathcal{H} | AA \rangle = \langle AA | \mathcal{H} | AA \uparrow \rangle = \langle AA \downarrow | \mathcal{H} | AA \rangle = \langle AA | \mathcal{H} | AA \downarrow \rangle \\
&= J_4 \cos \mathbf{k} \cdot \frac{\mathbf{a}}{2} - D_{\perp} \sin \mathbf{k} \cdot \frac{\mathbf{a}}{2}
\end{aligned} \tag{F.11}$$

$$\begin{aligned}
H_{4,14} &= \langle BB \uparrow | \mathcal{H} | BB \rangle = \langle BB | \mathcal{H} | BB \uparrow \rangle = \langle BB \downarrow | \mathcal{H} | BB \rangle = \langle BB | \mathcal{H} | BB \downarrow \rangle \\
&= J_4 \cos \mathbf{k} \cdot \frac{\mathbf{a}}{2} + D_{\perp} \sin \mathbf{k} \cdot \frac{\mathbf{a}}{2}
\end{aligned} \tag{F.12}$$

$$\begin{aligned}
H_{23} &= \langle AA | \mathcal{H} | \overline{AB} \rangle = \langle \overline{AB} | \mathcal{H} | AA \rangle^* = \langle BB | \mathcal{H} | \overline{AB} \rangle^* = \langle \overline{AB} | \mathcal{H} | BB \rangle \\
&= \langle AB_2 | \mathcal{H} | AA \rangle^* = \langle AA | \mathcal{H} | AB_2 \rangle = \langle AB_2 | \mathcal{H} | BB \rangle = \langle BB | \mathcal{H} | AB_2 \rangle^* \\
&= \langle \overline{AB} \uparrow | \mathcal{H} | AA' \rangle^* = \langle AA' | \mathcal{H} | \overline{AB} \uparrow \rangle = \langle AB \downarrow | \mathcal{H} | AA' \rangle^* = \langle AA' | \mathcal{H} | AB \downarrow \rangle \\
&= \langle \overline{AB} \uparrow | \mathcal{H} | BB' \rangle = \langle BB' | \mathcal{H} | \overline{AB} \uparrow \rangle^* = \langle AB \downarrow | \mathcal{H} | BB' \rangle = \langle BB' | \mathcal{H} | AB \downarrow \rangle^* \\
&= \langle AA \uparrow | \mathcal{H} | AB \uparrow \rangle = \langle AB \uparrow | \mathcal{H} | AA \uparrow \rangle^* = \langle BB \uparrow | \mathcal{H} | AB \uparrow \rangle^* = \langle AB \uparrow | \mathcal{H} | BB \uparrow \rangle \\
&= \langle AA \downarrow | \mathcal{H} | \overline{AB} \downarrow \rangle = \langle \overline{AB} \downarrow | \mathcal{H} | AA \downarrow \rangle^* = \langle BB \downarrow | \mathcal{H} | \overline{AB} \downarrow \rangle^* = \langle \overline{AB} \downarrow | \mathcal{H} | BB \downarrow \rangle \\
&= \frac{1}{2} (J_1 - iD_{\parallel}^z) e^{-ik \cdot \frac{b}{2}}
\end{aligned} \tag{F.13}$$

$$\begin{aligned}
H_{37} &= \langle AA \downarrow | \mathcal{H} | AB \rangle = \langle AB | \mathcal{H} | AA \downarrow \rangle^* = \langle AA \downarrow | \mathcal{H} | \overline{AB} \rangle^* = \langle \overline{AB} | \mathcal{H} | AA \downarrow \rangle \\
&= \langle BB \downarrow | \mathcal{H} | AB \rangle^* = \langle AB | \mathcal{H} | BB \downarrow \rangle = \langle BB \downarrow | \mathcal{H} | \overline{AB} \rangle = \langle \overline{AB} | \mathcal{H} | BB \downarrow \rangle^* \\
&= \langle AB \uparrow | \mathcal{H} | AA \rangle = \langle AA | \mathcal{H} | AB \uparrow \rangle^* = \langle \overline{AB} \uparrow | \mathcal{H} | AA \rangle^* = \langle AA | \mathcal{H} | \overline{AB} \uparrow \rangle \\
&= \langle AB \uparrow | \mathcal{H} | BB \rangle^* = \langle BB | \mathcal{H} | AB \uparrow \rangle = \langle \overline{AB} \uparrow | \mathcal{H} | BB \rangle = \langle BB | \mathcal{H} | \overline{AB} \uparrow \rangle^* \\
&= \langle AA \uparrow | \mathcal{H} | AB_2 \rangle^* = \langle AB_2 | \mathcal{H} | AA \uparrow \rangle = \langle BB \uparrow | \mathcal{H} | AB_2 \rangle = \langle AB_2 | \mathcal{H} | BB \uparrow \rangle^* \\
&= \langle AA \uparrow | \mathcal{H} | \overline{AB_2} \rangle = \langle \overline{AB_2} | \mathcal{H} | AA \uparrow \rangle^* = \langle BB \uparrow | \mathcal{H} | \overline{AB_2} \rangle^* = \langle \overline{AB_2} | \mathcal{H} | BB \uparrow \rangle \\
&= \frac{1}{2} J_3 e^{ik \cdot \frac{a+b}{2}}
\end{aligned} \tag{F.14}$$

$$\begin{aligned}
H_{39} &= \langle AA \uparrow | \mathcal{H} | AB \rangle^* = \langle AB | \mathcal{H} | AA \uparrow \rangle = \langle BB \uparrow | \mathcal{H} | AB \rangle = \langle AB | \mathcal{H} | BB \uparrow \rangle^* \\
&= \langle AB \downarrow | \mathcal{H} | AA \rangle = \langle AA | \mathcal{H} | AB \downarrow \rangle^* = \langle AB \downarrow | \mathcal{H} | BB \rangle^* = \langle BB | \mathcal{H} | AB \downarrow \rangle \\
&= \langle AA \downarrow | \mathcal{H} | \overline{AB_2} \rangle^* = \langle \overline{AB_2} | \mathcal{H} | AA \downarrow \rangle = \langle BB \downarrow | \mathcal{H} | \overline{AB_2} \rangle = \langle \overline{AB_2} | \mathcal{H} | BB \downarrow \rangle^* \\
&= \frac{1}{2} J_3 e^{ik \cdot \frac{a-b}{2}}
\end{aligned} \tag{F.15}$$

$$\begin{aligned}
H_{3,10} &= \langle AA \uparrow | \mathcal{H} | \overline{AB} \rangle = \langle \overline{AB} | \mathcal{H} | AA \uparrow \rangle^* = \langle BB \uparrow | \mathcal{H} | \overline{AB} \rangle^* = \langle \overline{AB} | \mathcal{H} | BB \uparrow \rangle \\
&= \langle \overline{AB} \downarrow | \mathcal{H} | AA \rangle^* = \langle AA | \mathcal{H} | \overline{AB} \downarrow \rangle = \langle \overline{AB} \downarrow | \mathcal{H} | BB \rangle = \langle BB | \mathcal{H} | \overline{AB} \downarrow \rangle^* \\
&= \langle AA \downarrow | \mathcal{H} | AB_2 \rangle = \langle AB_2 | \mathcal{H} | AA \downarrow \rangle^* = \langle BB \downarrow | \mathcal{H} | AB_2 \rangle^* = \langle AB_2 | \mathcal{H} | BB \downarrow \rangle \\
&= \frac{1}{2} (J_3 + iD_x^z) e^{ik \cdot \frac{a-b}{2}}
\end{aligned} \tag{F.16}$$

以上の結果を用いて、基底を  $|AB\rangle, |\overline{AB}\rangle, |AA\rangle, |BB\rangle, |AA'\rangle, |BB'\rangle, |AB \uparrow\rangle, |\overline{AB} \uparrow\rangle, |AB \downarrow\rangle, |\overline{AB} \downarrow\rangle, |AB_2\rangle, |\overline{AB_2}\rangle, |AA \uparrow\rangle, |BB \uparrow\rangle, |AA \downarrow\rangle, |BB \downarrow\rangle$  の順に書くとき、ハミルトニアン の 行列表示  $\mathcal{M}^{\text{paired-magnon}}(\mathbf{k})$  は以下のように書ける。

$$\begin{pmatrix}
d_1 & H_{12} & H_{13}^* & H_{13} & H_{15}^* & H_{15} & 0 & H_{19} & H_{19}^* & 0 & H_{12} & 0 & H_{39} & H_{39}^* & H_{37}^* & H_{37} \\
H_{12} & d_1 & H_{23}^* & H_{23} & H_{25}^* & H_{25} & H_{19}^* & 0 & 0 & H_{19} & 0 & H_{12} & H_{3,10}^* & H_{3,10} & H_{37}^* & H_{37} \\
H_{13} & H_{23} & d_2 & 0 & 0 & 0 & H_{37}^* & H_{37} & H_{39}^* & H_{3,10} & H_{23} & H_{13} & H_{3,13} & 0 & H_{3,13} & 0 \\
H_{13}^* & H_{23}^* & 0 & d_2 & 0 & 0 & H_{37} & H_{37}^* & H_{39} & H_{3,10}^* & H_{23}^* & H_{13}^* & 0 & H_{4,14} & 0 & H_{4,14} \\
H_{15} & H_{25} & 0 & 0 & d_3 & 0 & H_{13} & H_{23} & H_{23} & H_{13} & 0 & 0 & H_{12} & 0 & H_{12} & 0 \\
H_{15}^* & H_{25}^* & 0 & 0 & 0 & d_3 & H_{13}^* & H_{23}^* & H_{23} & H_{13}^* & 0 & 0 & 0 & H_{12} & 0 & H_{12} \\
0 & H_{19} & H_{37} & H_{37}^* & H_{13}^* & H_{13} & d_4 & 0 & H_{12} & 0 & 0 & 0 & H_{23}^* & H_{23} & 0 & 0 \\
H_{19}^* & 0 & H_{37}^* & H_{37} & H_{23}^* & H_{23} & 0 & d_4 & 0 & H_{12} & 0 & 0 & H_{13}^* & H_{13} & 0 & 0 \\
H_{19} & 0 & H_{39} & H_{39}^* & H_{23}^* & H_{23} & H_{12} & 0 & d_4 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & H_{13}^* & H_{13} \\
0 & H_{19}^* & H_{3,10}^* & H_{3,10} & H_{13}^* & H_{13} & 0 & H_{12} & 0 & d_4 & 0 & 0 & 0 & 0 & H_{23}^* & H_{23} \\
H_{12} & 0 & H_{23}^* & H_{23} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_5 & 0 & H_{37} & H_{37}^* & H_{3,10}^* & H_{3,10} \\
0 & H_{12} & H_{13}^* & H_{13} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_5 & H_{37}^* & H_{37} & H_{39} & H_{39}^* \\
H_{39}^* & H_{3,10} & H_{3,13} & 0 & H_{12} & 0 & H_{23} & H_{13} & 0 & 0 & H_{37}^* & H_{37} & d_5 & 0 & 0 & 0 \\
H_{39} & H_{3,10}^* & 0 & H_{4,14} & 0 & H_{12} & H_{23}^* & H_{13} & 0 & 0 & H_{37} & H_{37}^* & 0 & d_5 & 0 & 0 \\
H_{37} & H_{37}^* & H_{3,13} & 0 & H_{12} & 0 & 0 & 0 & H_{13} & H_{23} & H_{3,10} & H_{39}^* & 0 & 0 & d_5 & 0 \\
H_{37}^* & H_{37} & 0 & H_{4,14} & 0 & H_{12} & 0 & 0 & H_{13}^* & H_{23} & H_{3,10}^* & H_{39} & 0 & 0 & 0 & d_5
\end{pmatrix} \tag{F.17}$$

磁場を印加した方向の  $U(1)$  対称性を破る DM 項がもたらす、マグノンとマグノンペアの混成項について、

$$x_{11} = \langle AB | \mathcal{H} | A \rangle = \langle A | \mathcal{H} | AB \rangle^* = \langle \overline{AB} | \mathcal{H} | A \rangle^* = \langle A | \mathcal{H} | \overline{AB} \rangle \quad (\text{F.18})$$

$$= \langle AB | \mathcal{H} | B \rangle^* = \langle B | \mathcal{H} | AB \rangle = \langle \overline{AB} | \mathcal{H} | B \rangle = \langle B | \mathcal{H} | \overline{AB} \rangle^* \quad (\text{F.19})$$

$$= -\frac{1}{2i} D_{\parallel}^x e^{ik \cdot \frac{b}{2}} \quad (\text{F.20})$$

$$x_{15} = \langle AA' | \mathcal{H} | A \rangle = \langle A | \mathcal{H} | AA' \rangle = \langle BB' | \mathcal{H} | B \rangle = \langle B | \mathcal{H} | BB' \rangle \quad (\text{F.21})$$

$$= -D_{\perp}^x \sin \mathbf{k} \cdot \frac{\mathbf{a}}{2} \quad (\text{F.22})$$

となり、マグノンとマグノンペアの混成状態をもたらす非対角ブロック行列  $\mathcal{M}^{\text{hybrid}}(\mathbf{k})$  は以下のように書ける。

$$\mathcal{M}^{\text{hybrid}}(\mathbf{k}) = \begin{pmatrix} x_{11}^* & x_{11} & 0 & 0 & x_{15} & 0 & 0 & \dots \\ x_{11} & x_{11}^* & 0 & 0 & 0 & x_{15} & 0 & \dots \end{pmatrix} \quad (\text{F.23})$$

ここで、 $\mathcal{M}^{\text{hybrid}}(\mathbf{k})$  は  $2 \times 16$  行列であり、 $\dots$  以下はすべて 0 である。

## 謝辞

はじめに、本論文執筆にあたり筆者と関わってきた多くの人に感謝申し上げます。

指導教員である押川正毅教授には、ご多忙の中多くの時間を割いていただき、年末年始昼夜を問わず議論し本論文執筆の指導をしていただきました。また、研究室セミナーや論文紹介の場などでも手厚く指導していただきました。学会やアメリカで行われた冬の学校への参加など、大学院での研究生活において様々な貴重な経験もさせていただき、修士課程を含めた5年間、本当にお世話になりました。ありがとうございます。

本研究は茨城大学の佐藤正寛先生と共同研究したもので、佐藤先生には研究の進め方について指導していただき、さらに本論文執筆にあたって非常に手厚くご指導していただきました。筆者が博士課程在籍中に原子力研究機構から茨城大学に異動され、大変ご多忙であったにもかかわらず、メールやスカイプを通して何度も議論を重ねていただいたおかげで、本論文完成に至ることができました。佐藤先生には言葉にできないほど感謝しております。

筆者が在籍する押川研究室の多田靖啓助教には、本論文執筆にあたり、ホール効果に関する知識や文章の表現方法など、非常に有益なアドバイスを数多くいただきました。ドイツに長期滞在中のため時差があったにもかかわらず、メールやスカイプで議論していただいたおかげで、本論文の質が飛躍的にあがりました。本当にありがとうございます。

理化学研究所の桃井勉先生には、本研究で取り上げた双2次相互作用を持つパイロクロア反強磁性体における磁場中相図やマグノン分子の不安定性に関する研究において、修士課程在籍時から継続的に議論していただきました。この研究から、筆者はスピンネマティック相に興味を持ち、マグノンペアを直接観測する方法を理論的に提案したいと思うに至りました。福井大学の浅野貴行先生には、筆者の九州大学理学部在籍時、卒業研究で実験研究の指導をしていただきました。この経験から、筆者は理論研究を行うにあたり、現実物質や実際の実験にも注目しつつ研究を進めていくことが出来ました。桃井先生と浅野先生には本学位論文の土台を与えていただきました。

また、研究を進める際、計算機の素人だった筆者に Python の基本的な扱い方を教えてくださり、直面した様々な技術的な問題について議論してくださった中川裕也さん、藤田浩之さん、本研究に興味を持ち議論してくださった古谷俊介さんにもこの場を借りてお礼申し上げます。出張の事務的な手続きの支援をしてくださった押川研究室秘書の辻敦子さんには、研究室での生活や私生活においても大変お世話になりました。さらに、修士課程から、筆者が押川研究室に在籍した5年間で大学院生活を共にした先輩、友人、後輩、事務的な面や私生活の面で大変お世話になった事務の方や秘書さん方、全ての方をここに列挙することは難しいですが、本論文出版に至るまでお世話になったみなさまにこの場を借りてお礼申し上げます。

ます。

最後に、大学院進学の際、関東に出ていくことを快く応援し、進学後も精神的、経済的な支援を惜しみなく続けてくれた福岡に住む家族に言葉にできないほどの感謝をしております。本当にありがとうございました。

## 参考文献

- [1] E. H. Hall, *Am. J. Math.* **2**, 287 (1879).
- [2] K. von Klitzing, G. Droda, and M. Pepper, *Phys. Rev. Lett.* **45**, 494 (1980).
- [3] T. Ando, Y. Matsumoto, and Y. Uemura, *J. Phys. Soc. Jpn.* **39**, 279 (1975).
- [4] B. Laughlin, *Phys. Rev. B* **23**, 5632 (1981).
- [5] D. J. Thouless, M. Kohmoto, M. P. Nightingale, and M. den Nijs, *Phys. Rev. Lett.* **49**, 405 (1982).
- [6] M. Kohmoto, *Ann. Phys.* **160**, 343 (1985).
- [7] S. Maekawa, S. O. Valenzuela, E. Saitoh, and T. Kimura, editors, *Spin Current* (Oxford University Press, 2012).
- [8] 齊藤英治、村上修一, *スピン流とトポロジカル絶縁体* (共立出版, 2014).
- [9] Y. K. Kato, R. C. Myers, A. C. Gossard, and D. D. Awschalom, *Science* **306**, 1910 (2004).
- [10] S. Murakami, N. Nagaosa, and S.-C. Zhang, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 156804 (2004).
- [11] R. Karplus and J. M. Luttinger, *Phys. Rev.* **95**, 1154 (1954).
- [12] K. Ohgushi, S. Murakami, and N. Nagaosa, *Phys. Rev. B* **62**, R6065 (2000).
- [13] C. L. Kane and E. J. Mele, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 146802 (2005).
- [14] M. König, S. Wiedmann, C. Brüne, A. Roth, H. Buhmann, L. W. Molenkamp, X.-L. Qi, and S.-C. Zhang, *Science* **318**, 766 (2007).
- [15] A. P. Schnyder, S. Ryu, A. Furusaki, and A. W. W. Ludwig, *Phys. Rev. B* **78**, 195125 (2008).
- [16] A. Kitaev, *AIP Conf. Proc.* **1134**, 22 (2009).
- [17] 安藤陽一, *トポロジカル絶縁体入門* (講談社, 2014).
- [18] F. Pollmann, A. M. Turner, E. Berg, and M. Oshikawa, *Phys. Rev. B* **81**, 064439 (2010).
- [19] F. Pollmann, E. Berg, A. M. Turner, and M. Oshikawa, *Phys. Rev. B* **85**, 075125 (2012).
- [20] S. Fujimoto, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 047203 (2009).
- [21] H. Katsura, N. Nagaosa, and P. A. Lee, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 066403 (2010).
- [22] Y. Onose, T. Ideue, H. Katsura, Y. Shiomi, N. Nagaosa, and Y. Tokura, *Science* **329**, 297 (2010).
- [23] L. Smrčka and P. Středa, *J. Phys. C* **10**, 2153 (1977).
- [24] J. M. Luttinger, *Phys. Rev.* **135**, A1505 (1964).
- [25] R. Matsumoto and S. Murakami, *Phys. Rev. B* **84**, 184406 (2011).
- [26] 松本遼, *物性研究* **96**, 580 (2011).
- [27] J. Romhányi, K. Penc, and R. Ganesh, *Nature Comm.* **6**, 6805 (2015).

- [28] T. Giamarchi, *Quantum Physics in One Dimension* (Clarendon Press, 2004).
- [29] A. M. Tsvelik, *Quantum Field Theory in Condensed Matter Physics* (Cambridge University Press, 2007).
- [30] A. O. Gogolin, A. A. Nersesyan, and A. M. Tsvelik, *Bosonization and Strongly Correlated Systems* (Cambridge University Press; Revised, 2004).
- [31] L. Balents, *Nature* **464**, 199 (2010).
- [32] X.-G. Wen, *Quantum Field Theory of Many-Body Systems: From the Origin of Sound to an Origin of Light and Electrons* (OUP Oxford, 2004).
- [33] M. Blume and Y. Y. Hsieh, *J. Appl. Phys.* **40**, 1249 (1969).
- [34] H. Tsunetsugu and M. Arikawa, *J. Soc. Jpn.* **75**, 083701 (2006).
- [35] M. E. Zhitomirsky and H. Tsunetsugu, *Europhys. Lett.* **92**, 37001 (2010).
- [36] K. Penc, N. Shannon, and H. Shiba, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 197203 (2004).
- [37] Y. Motome, K. Penc, and N. Shannon, *J. Magn. Magn. Mater.* **300**, 57 (2006).
- [38] T. Hikihara, L. Kecke, T. Momoi, and A. Furusaki, *Phys. Rev. B* **78**, 144404 (2008).
- [39] L. Kecke, T. Momoi, and A. Furusaki, *Phys. Rev. B* **76**, 060407 (2007).
- [40] J. Sudan, A. Lüscher, and A. M. Läuchli, *Phys. Rev. B* **80**, 140402 (2009).
- [41] K. Uchida, J. Xiao, H. Adachi, J. Ohe, S. Takahashi, J. Ieda, T. Ota, Y. Kajiwara, H. Umezawa, H. Kawai, G. E. W. Bauer, S. Maekawa, and E. Saitoh, *Nat. Mater.* **9**, 894 (2010).
- [42] F. D. M. Haldane, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2015 (1988).
- [43] T. Fukui, Y. Hatsugai, and H. Suzuki, *J. Phys. Soc. Jpn.* **74**, 1674 (2005).
- [44] T. Moriya, *Phys. Rev.* **120**, 91 (1960).
- [45] T. Ideue, Y. Onose, H. Katsura, Y. Shiomi, S. Ishiwata, N. Nagaosa, and Y. Tokura, *Phys. Rev. B* **85**, 134411 (2012).
- [46] E. Takata, T. Momoi, and M. Oshikawa, arXiv:1510.02373.
- [47] H. Ueda, H. A. Katori, H. Mitamura, T. Goto, and H. Takagi, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 047202 (2005).
- [48] H. Ueda, H. Mitamura, T. Goto, and Y. Ueda, *Phys. Rev. B* **73**, 094415 (2006).
- [49] A. Miyata, H. Ueda, Y. Ueda, H. Sawabe, and S. Takeyama, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 207203 (2011).
- [50] M. Elhajal, B. Canals, R. Sunyer, and C. Lacroix, *Phys. Rev. B* **71**, 094420 (2005).
- [51] M. E. Zhitomirsky and H. Tsunetsugu, *Phys. Rev. B* **70**, 100403 (2004).
- [52] M. E. Zhitomirsky and H. Tsunetsugu, *Phys. Rev. B* **75**, 224416 (2007).
- [53] M. Hase, H. Kuroe, K. Ozawa, O. Suzuki, H. Kitazawa, G. Kido, and T. Sekine, *Phys. Rev. B* **70**, 104426 (2004).
- [54] S.-L. Drechsler, J. Richter, A. A. Gippius, A. Vasiliev, A. A. Bush, A. S. Moskvina, J. Málek, Y. Prots, W. Schnelle, and H. Rosner, *Europhys. Lett.* **73**, 83 (2006).
- [55] M. Enderle, C. Mukherjee, B. Fåk, R. K. Kremer, J.-M. Broto, H. Rosner, S.-L. Drechsler, J. Richter, J. Malek, A. Prokofiev, W. Assmus, S. Pujol, J.-L. Raggazzoni, H. Rakoto, M. Rheinstädter, and H. M. Rønnow, *Europhys. Lett.* **70**, 237 (2005).
- [56] T. Masuda, A. Zheludev, A. Bush, M. Markina, and A. Vasiliev, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 177201 (2004).

- 
- [57] M. Sato, T. Hikiyara, and T. Momoi, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 077206 (2013).
- [58] M. Sato, T. Momoi, and A. Furusaki, *Phys. Rev. B* **79**, 060406 (2009).
- [59] A. Mook, J. Henk, and I. Mertig, *Phys. Rev. B* **89**, 134409 (2014).
- [60] A. Mook, J. Henk, and I. Mertig, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 157204 (2016).
- [61] M. C. Kemei, P. T. Barton, S. L. Moffitt, M. W. Gaultois, J. A. Kurzman, R. Seshadri, M. R. Suchomel, and Y.-I. Kim, arxiv:1302.5746v2.
- [62] S.-H. Lee, C. Broholm, T. H. Kim, W. R. II, and S.-W. Cheong, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 3718 (2000).
- [63] S. Kimura, M. Hagiwara, T. Takeuchi, H. Yamaguchi, H. Ueda, Y. Ueda, and K. Kindo, *Phys. Rev. B* **83**, 214401 (2011).
- [64] A. N. Vasil'ev, L. A. Ponomarenko, H. Manaka, I. Yamada, M. Isobe, and Y. Ueda, *Phys. Rev. B* **64**, 024419 (2001).
- [65] A. Durif, J. C. Grenier, J. C. Joubert, and T. Q. Duc, *Bull. Soc. Fr. Mineral. Cristallogr.* **89**, 407 (1966).