

論文の内容の要旨

論文題目 Spin dynamics at finite temperatures in the Kitaev model

(キタエフ模型における有限温度スピンドYNAMICS)

氏名 吉竹 純基

磁性体において最低温まで対称性の破れを示さない量子スピン液体は、秩序変数によって特徴づけられる通常の磁気秩序状態とは質的に異なる新奇な量子状態として注目を集めている。P. W. Anderson によって量子スピン液体の典型例である Resonating Valence Bond (RVB) 状態が提案されて以来[1]、量子スピン液体の問題は、物性物理学における中心的課題の一つとして長年にわたって精力的に研究されてきた。

近年、量子スピン液体を実現する新たな可能性として、ハニカム格子上でボンド方向に依存した相互作用を持つキタエフ模型が提案された[2]。キタエフ模型は、システムサイズに比例した数の保存量を持つため、厳密に基底状態を求めることができるという大きな特徴を有する。また、スピン演算子をマヨラナフェルミオンで書き直すことで、基底状態が量子スピン液体であることや、スピン励起が遍歴的なマヨラナフェルミオン励起と局所的なフラックス励起とに分数化することを厳密に示すことができる。その後、スピン軌道結合の強いモット絶縁体においてキタエフ型の相互作用が実現し得ることが指摘され[3]、キタエフ模型の候補物質としてイリジウム酸化物やルテニウム化合物などに対する精力的な研究が行われている。

理論的には、これまでに、基底状態における動的なスピン相関[4]や、有限温度における静的な物理量[5,6]、及びラマン散乱強度[7,8]などが調べられてきた。これらを通じて、様々な物理量のエネルギーや温度依存性に、スピンの分数化を反映した特徴的な振る舞いが現れることが見出されている。例えば、比熱には、遍歴的なマヨラナフェルミオン励起と局所的なフラックス励起に対応した二つのピークが現れる。高温側(T_H)はマヨラナフェルミオンの縮退温度、低温側(T_L)はフラックス励起の凍結温度に対応する。また、動的スピン構造因子やラマン散乱強度には、広いエネルギー範囲にわたる非弾性応答が現れる。さらに、ラマン散乱の積分強度の温度依存性には、通常の磁性体には見られない、フェルミ粒子的な振る舞いが広い温度範囲で見られる。これらの分数化を反映した特徴的な振る舞いは、実際に α - RuCl_3 に対する非弾性中性子散乱[9]や α - RuCl_3 、 β -及び γ - Li_2IrO_3 に対するラマン散乱[10,11]の実験において観測されている。

量子スピン液体は、最低温まで磁気秩序を示さず、局所的な秩序パラメータを持たないため、その実現をあらわに示すことが一般に困難である。しかしながら、上記のように、量子スピン液体の特徴の一つであるスピンの分数化を反映した特異的な振る舞いを確認することは重要な手掛かりとなりうる。キタエフ模型においては、これまでに様々な物理量が計算されてきたが、実験的に非常に重要な、有限温度におけるスピンドYNAMICSに関してはほとんど研究されてこなかった。これは、既存の計算手法では、局所的な保存量の動的な変化を取り込むことが困難であったためである。スピンの分数化を通じて量子スピン液体状態を同定する上で、広い温度・エネルギー範囲にわたるスピンドYNAMICSを明らかにすることは喫緊の課題とされてきた。

そこで本研究では、2次元ハニカム格子及び3次元ハイパーハニカム格子上のキタエフ模型に対し、有限温度での動的な性質を明らかにすることを目的とした研究を行なった。そのために、キタエフ模型及びそれを拡張した模型に対して適用可能な新たな計算手法を開発した。それらを用いて、実験的に重要な、動的スピン構造因子、核磁気共鳴緩和率 $1/T_1$ 、磁化率の温度依存性を明らかにした。

本研究において開発した新しい数値計算手法は、クラスター動的平均場近似法(CDMFT)と連続時間量子モンテカルロ法(CTQMC)の二つである。いずれも電子系などのフェルミオン系に対して発展してきた数値計算手法であるが、本研究では、マヨラナフェルミオン形式に基づいた定式化を行なうことで、キタエフ模型に適用可能な手法を開発した。まず CDMFT は、クラスター近似を用いることで、先行研究で用いられてきた実空間量子モンテカルロ法(QMC)の代替手法を与えるものである。QMC と比べて計算コストが大幅に抑えられるとともに、統計誤差のない結果を与えることができる利点がある。一方、CTQMC は、局所保存量の時間変化を取扱うことで、動的なスピン相関の計算を可能にするものである。計算手法としては、局所的な保存量の配置と統計重みを与える CDMFT あるいは QMC と、それぞれの配置における動的なスピン相関を計算する CTQMC とを組み合わせることで、有限温度におけるスピンドYNAMIXSを計算することが可能となる。本研究では、こうした CDMFT+CTQMC 及び QMC+CTQMC という手法を用いて、動的スピン構造因子、核磁気共鳴緩和率 $1/T_1$ 、磁化率などの温度依存性の解析を行った。

その結果、最も特徴的な振る舞いとして、静的なスピン相関が飽和する温度 T_H 以下において、動的なスピン相関が発達し続ける振る舞いを見出した。このような静的なスピン相関と動的なスピン相関の乖離は、従来の磁性体では見られない特異な現象であり、量子スピン液体のスピン励起の分数化を色濃く反映したものと考えられる。

まず、動的構造因子については、十分高温における $\omega \sim 0$ を中心とした波数依存性を持たない応答から、温度を下げると、 T_H 以下で全体的に高エネルギー側に重みがシフトする振る舞いを見出した。この変化は T_H 以下の温度で遍歴的なマヨラナフェルミオンの縮退に対応している。また $\omega \sim 0$ の付近に準弾性的なピークが現れ、 T_L に向かって急激に発達していくことを明らかにした。さらに、 T_L 以下では、基底状態でのフラックスギャップを反映して、この準弾性ピークが有限のエネルギー領域にシフトすることも見出した。

核磁気共鳴緩和率 $1/T_1$ については、 T_H 以下で増大する振る舞いを見出した。さらに温度を下げると、 T_L より少し上の温度でピークを示したのち減少し、急速にゼロに近づいていくという結果を得た。局所的なフラックスの配置を手で与えた場合の計算との比較により、 T_H 以下の増大は、フェルミ縮退した遍歴的なマヨラナフェルミオンのもとでの局所的なフラックスの熱的な励起によるものであり、 T_L 程度以下の現象は、局所的なフラックス励起の凍結によるものであることが分かった。このように、 $1/T_1$ の非単調な振る舞いは、分数化によって現れる異なった自由度がそれぞれ異なった温度スケールを持つことを反映したものであると考えられる。

一方、磁化率については、十分高温における Curie-Weiss 的な振る舞いから、温度を下げていくと T_H 程度で Curie-Weiss 則からのずれが見え始め、 T_L より上の温度でピークを示した後、 T_L 程度で顕著に減少し、再低温では非ゼロの値に収束するという結果を得た。 T_L 付近の減少は、フラックス励起の凍結を反映したものと考えられる。また、最低温で非ゼロの値に収束するのは磁場方向のスピンを保存しない系で期待される結果である。

2次元ハニカム格子と3次元ハイパーハニカム格子の場合を比べると、磁化率や $1/T_1$ は全体的には同様の温度依存性を示すことが分かった。一方で、 T_L 付近では、2次元ハニカム格子の場合には全ての物理量が滑らかに変化しているのに対して、3次元ハイパーハニカム格子の場合には、 $1/T_1$ や磁化率の温度微分に特異的な振る舞いが見出された。これは3次元ハイパーハニカム格子において T_L 付近で起こる、常磁性—量子スピン液体間の相転移を反映した振る舞いと考えられる。

以上のように、磁化率、動的スピン構造因子や $1/T_1$ がそれぞれ分数化した自由度を反映した特徴的な振る舞いを示すことが分かった。これらの結果は、本研究で開発した新しい計算手法を用いることではじめて可能となったものである。また、これらは全て実験的に観測可能な物理量であり、キタエ

フ候補物質におけるスピンの分数化及びスピ液体状態の実現を確認する上で決定的な役割を果たすものである。

- [1] P. W. Anderson, *Mater. Res. Bull.* **8**, 153 (1973).
- [2] A. Kitaev, *Ann. Phys.* **321**, 2 (2006).
- [3] G. Jackeli and G. Khaliullin, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 017205 (2009).
- [4] J. Knolle *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 207203 (2014).
- [5] J. Nasu, M. Udagawa, and Y. Motome, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 197205 (2014).
- [6] J. Nasu, M. Udagawa, and Y. Motome, *Phys. Rev. B* **92**, 115122 (2015).
- [7] J. Knolle *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 187201 (2014).
- [8] J. Nasu *et al.*, *Nat. Phys.* **12**, 912 (2016).
- [9] A. Banerjee *et al.*, *Nat. Mater.* **15**, 733 (2016).
- [10] L. J. Sandilands *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 147201 (2015).
- [11] A. Glamazda *et al.*, *Nat. Comm.* **7**, 12286 (2016).