

論文の内容の要旨

カゴメ格子に関連したフラストレート磁性体の理論的研究

(Theoretical study on frustrated magnets
related to kagome lattice)

氏名 溝口 知成

本論文では、カゴメ格子に関係したフラストレート磁性とスピン液体に関連する2つの研究結果をまとめた。まず第1章で、フラストレーションとスピン液体に関する基本概念の導入を行った。

第I部では、ハイパーカゴメ格子をもつイリジウム酸化物 $\text{Na}_4\text{Ir}_3\text{O}_8$ の磁性に関する研究結果を示した。

$\text{Na}_4\text{Ir}_3\text{O}_8$ は量子スピン液体の候補として注目されている物質である。一般に IrO_6 構造をもつイリジウム酸化物では、電子相関と強いスピン軌道相互作用の協奏によって、擬スピン $j_{\text{eff}} = 1/2$ の状態が低エネルギーの物理を支配する。これは強い量子揺らぎがあることを意味し、量子スピン液体の実現に有利である。さらに $\text{Na}_4\text{Ir}_3\text{O}_8$ では、Ir サイトの磁気モーメントがハイパーカゴメ格子 (3次元空間における三角形の頂点共有構造をもつ格子) 上にある。[図1(a)参照。] ハイパーカゴメ格子は強い幾何学的フラストレーションを有しているので、このことも量子スピン液体の実現の可能性を示唆している。

実験的には、磁化率や比熱に異常がなく、量子スピン液体の可能性がある。一方で、 μSR や NMR では最低温領域でスピンダイナミクスの凍結と思われる振る舞いが観測されている。したがって、本物質の基底状態は未だに解明されていない。

本研究では、 $\text{Na}_4\text{Ir}_3\text{O}_8$ の低温での振る舞いを調べるための出発点として、歪みを無視した理想的なハイパーカゴメ格子における局在スピンモデルの解析を行った。具体的には、電子系の多軌道ハバードモデルから出発して有効スピンモデルの導出を行い、その基底状態について古典極限で解析した。第2章では、本研究の背景を説明した。まず $5d$ 電子系での電子相関と強いスピン軌道相互作用の協奏による新奇な物理現象の発現を概説した。次に、新奇な物理現象の舞台となっている様々なイリジウム酸化物の研究の現状をまとめた。さらに、本研究の主題となる $\text{Na}_4\text{Ir}_3\text{O}_8$ の先行研究についてまとめたうえで、本研究の目的を提示した。

第3章では、有効スピンモデルの導出を行った。その準備として、ハイパーカゴメ格子の構造に関する説明を行った。具体的には、 $\text{Na}_4\text{Ir}_3\text{O}_8$ の結晶構造と、Ir サイトが構成するハイパーカゴメ格子の副格子の定

義を示し、ハイパーカゴメ格子の重要な 2 つの対称性 (C_3 回転対称性と、 C_2 回転対称性) について説明し、ボンドの方向に応じた分類と、それに基づくサイトの分類を行なった。次に、強いスピン軌道相互作用を考慮した多軌道ハバード模型から出発して強結合展開を行うことで、擬スピン $j_{\text{eff}} = 1/2$ に対するのスピン間相互作用を求めた。その結果、4 つのパラメーターをもつ J - K - D - Γ 模型

$$\mathcal{H} = \sum_{\langle ij \rangle \in \alpha, \beta\gamma} \left[JS_i \cdot S_j + KS_i^\alpha S_j^\alpha + D\eta_{ij}(S_i^\beta S_j^\gamma - S_i^\gamma S_j^\beta) + \Gamma\xi_{ij}(S_i^\beta S_j^\gamma + S_i^\gamma S_j^\beta) \right], \quad (1)$$

を得た。ここで J は等方的なハイゼンベルグ項、 K はキタエフ項、 D はジャロシンスキー・守谷項、 Γ は対称的非対角項である。

第 4 章では、 J - K - D - Γ 模型の基底状態解析を行った。まず、本研究で用いた 2 つの手法、すなわち Luttinger-Tisza 法と simulated annealing 法について説明した。次に、本模型の古典極限における基底状態相図を示した。[図 1(b)、1(c) 参照。] その結果、多様な異方的相互作用の組み合わせによって、3 つの特徴的な $q = 0$ の磁気秩序状態、(\mathbb{Z}_2 、 \mathbb{Z}_6^{2p} 、 \mathbb{Z}_6^{1p} 状態) が発現しうることを示した。

第 5 章では第 I 部のまとめと展望を提示した。

次に第 II 部では、カゴメ格子上の J_1 - J_2 - J_3 イジング模型における、分数電荷間の相互作用の効果を調べた結果を示した。

分数化は物質のトポロジカルな状態の普遍的な性質であり、これを調べるのはトポロジカルな状態の性質を理解することにつながる。特に、分数自由度間の相互作用は新奇な状態を生み出す可能性があるので、これを調べるのは重要である。

分数化は、フラストレートした古典スピン模型でも見られる。古典スピン模型で得られる古典スピン液体は、量子スピン液体の母体となるので、古典スピン模型における分数化を調べることでその「量子版」の性質の基盤を理解することができると思われる。

本研究では、分数自由度 (電荷) 間の相互作用を調べるために、カゴメ格子上の J_1 - J_2 - J_3 イジング模型の熱力学的性質を調べた。ここで J_1 が最近接相互作用、 J_2 は次近接相互作用、 J_3 は次々近接相互作用を表す。

第 6 章では、本研究の背景を説明した。まずトポロジカル相と分数化の説明を行った。次に、分数化のおこる古典スピン模型の例としてパイロクロア格子上の古典スピンアイス模型に関する説明を行い、それを踏まえて本研究の目的を提示した。

第 7 章では、本研究で用いたカゴメ格子上の J_1 - J_2 - J_3 イジング模型

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_1 + \mathcal{H}_2 + \mathcal{H}_3 = J_1 \sum_{\langle i,j \rangle_{\text{n.n.}}} \sigma_i^z \sigma_j^z + J_2 \sum_{\langle i,j \rangle_{\text{2nd}}} \sigma_i^z \sigma_j^z + J_3 \sum_{\langle i,j \rangle_{\text{3rd}}} \sigma_i^z \sigma_j^z, \quad (2)$$

の導入と、その基底状態についての説明を行った。[図 2(a) 参照。] 本研究では $J_1 = 1, J_2 = J_3 = J$ という特定のパラメーターを選び、解析を行なった。このパラメーターでは、ハミルトニアンが、分数化された自由度である「電荷」が短距離相互作用をする模型

$$\mathcal{H} = \left(\frac{1}{2} - J\right) \sum_p Q_p^2 - J \sum_{\langle p,q \rangle} Q_p Q_q + (\text{const.}), \quad (3)$$

に書き換えられるからである。ここで p はカゴメ格子を構成する三角形のラベルで、電荷 Q_p は各三角形上での 3 つのスピンの和で定義される。電荷ハミルトニアンは bipartite なハニカム格子上で定義されており、一見シンプルな模型に見えるが、実際は電荷配置がもとのスピン自由度に起因した格子版の「ガウスの法則」

$$\sum_{p \in D} Q_p = \sum_{i \in \partial D} \mathbf{e}_i \cdot \boldsymbol{\xi}_i^{(D)}, \quad (4)$$

によって拘束されているので、非自明な状態が実現しうる。この知見に基づき、本模型の基底状態相図を、電荷描像の観点から整理した。 $J < 0$ では異符号の電荷の間に引力が働くので、異なる符号が交替で並ぶ配置が基底状態になる。具体的には、 $J < -1$ では強磁性相、 $-1 < J < 0$ では電荷秩序相が実現する。一方、 $J > 0$ では同符号の電荷の間に引力が働くが、「ガウスの法則」によって同符号の電荷の一樣な配置が禁止されているために、単純には基底状態を推測することが難しい。そこで、電荷配置を同符号の電荷の集合(クラスタ)に分割し、そのエネルギーを評価することで、本模型の基底状態の相境界に関する厳密な議論を行った。その結果、 $0 < J < 1/3$ では新しいスピ液体を発見し、 $J > 1/3$ では12サイトを単位とする磁気秩序相が基底状態であることを示した。また、新しいスピ液体は、同符号の電荷が六角形上に並ぶ六員環構造をつくることの本質的であることを明らかにした。

第8章では有限温度の解析で用いた手法の説明を行った。具体的には、古典モンテカルロ法における低温での緩和を促進するためのグローバルな状態更新の方法と、三角形の頂点共有の半無限格子(Husimi tree)上のBethe近似について説明した。

第9章では、まず本模型の有限温度相図を示し、その特徴を議論した。[図2(b)参照。]次に、電荷秩序相と新しいスピ液体について、熱力学量と静的磁気構造因子を調べた結果を示した。電荷秩序相では相転移のユニバーサリティクラスを調べるために有限サイズスケーリングによる解析を行った。新しいスピ液体については、残留エントロピーが0.32になることを明らかにした。これはこれまでに知られているどの状態とも一致しない値であり、この状態が新しいスピ液体であることを示唆している。また、静的磁気構造因子には、実空間での六員環構造に起因して、「半月型」構造という特徴的なパターンが現れることを明らかにした。[図2(c)参照。]

最後に10章では第II部のまとめと展望を提示した。

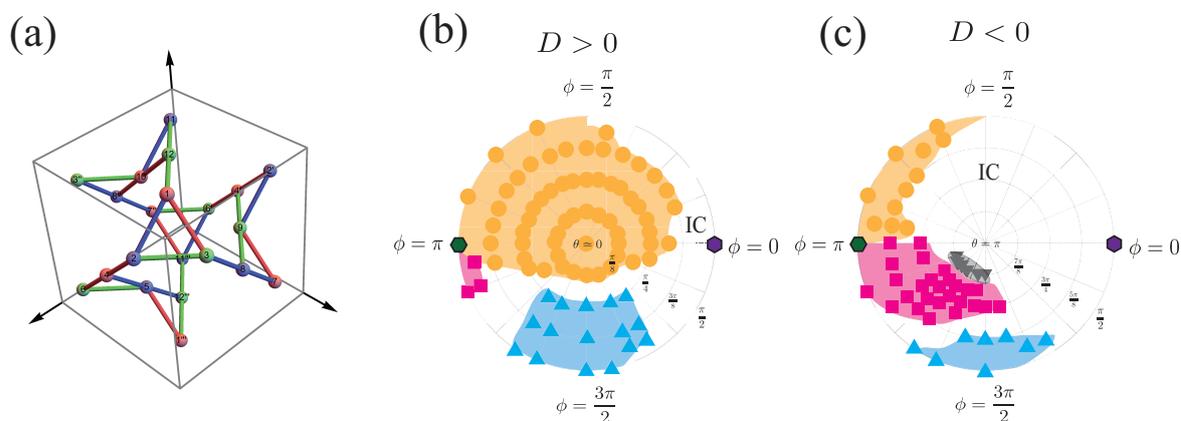


図1: (a) ハイパーカゴメ格子。(b)(c) J - K - D - Γ 模型の相図。(b) が $D > 0$ 、(c) が $D < 0$ の場合。

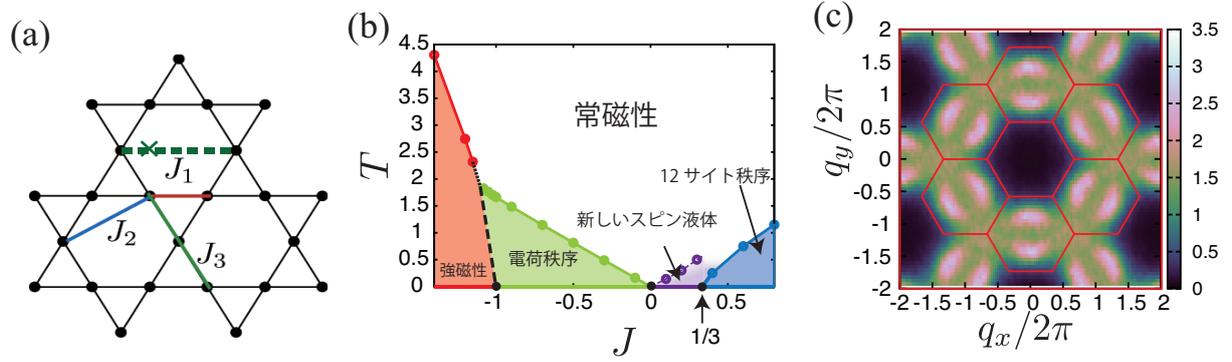


図 2: (a) カゴメ格子と J_1 - J_2 - J_3 模型の模式図。(b) $J_1 = 1, J_2 = J_3 = J$ のときの有限温度相図。(c) 新しいスピ液体の低温での静的磁気構造因子。