

2次元反強磁性体の非線形効果とスピン伝導

早稲田大学 先進理工学研究科 物理学及応用物理学専攻 久保 百合香^{*1}

^{*1} E-mail: kubo@kh.phys.waseda.ac.jp

目次

第 1 章	序章	1
1.1	反強磁性体と非線形相互作用	1
1.2	スピン流	3
第 2 章	スピン波理論	6
2.1	線形スピン波理論	6
2.2	非線形効果	9
第 3 章	3 マグノン相互作用と“ロトン”	14
3.1	3 マグノン相互作用と外部磁場	14
3.2	励起スペクトルの非線形補正とロトン	17
3.3	“ロトン”の磁場変化の詳細	21
3.4	量子相転移とロトンの実験的観測	28
3.5	非線形スペクトル・まとめ	30
第 4 章	2 次元反強磁性体のスピン伝導度	32
4.1	先行研究	33
4.2	磁化の保存	36
4.3	Spin Stiffness	39
4.4	三角格子反強磁性体	40
4.5	スピン流密度演算子の定義	42
4.6	線形応答理論	44
4.7	総和則	51
4.8	結果・考察	55
4.9	スピン伝導度・まとめ	60
第 5 章	まとめ	62
	謝辞	64
	参考文献	65

第 1 章

序章

本研究では正方格子反強磁性体に焦点を当てて、外部磁場下の励起スペクトルとスピン伝導を調べる。本論文では、前半部に励起スペクトルとその非線形効果、後半部にスピン伝導について記述する。

1.1 反強磁性体と非線形相互作用

2次元正方格子反強磁性体はゼロ磁場で Néel 構造を持ち、その励起として Néel 構造からの揺らぎが波 [スピン波] として伝わる。このスピン波を量子化したものをマグノンと呼ぶ [1]。また、その励起スペクトルは、線形スピン波スペクトル [フォノンでは調和近似に相当] にわずかな補正を加えることによって良く説明することができる [2, 3]。

しかし外部磁場を印加すると、スピン同士が平行・反平行ではない noncollinear な構造をとるようになる。このとき Néel 構造が持っていた、SO(2) 対称性が破れる [4]。したがって、対称性によって禁止されていた 3 マグノン相互作用（1 マグノン状態と 2 マグノン状態の混合によって生じるマグノン・マグノン相互作用 [非線形相互作用] の一つ。）が、磁場によって誘起される [4-6]。3 マグノン相互作用の強さは、スピンの構造に強く依存するため磁場によって大きく変化する。

スピンの noncollinear な構造は、磁氣的フラストレーションを持つ系 [図 1.1(a)(b)] や、外部磁場中の反強磁性体 [図 1.1(c)] などで生じる。ここで前者は交換相互作用同士の競合、後者は交換相互作用と Zeeman エネルギーの競合によって生じる。

線形スピン波理論はマグノン間相互作用が弱い系で ($S = \infty$ の古典極限など) 成立する近似理論であり、強い 3 マグノン相互作用が存在すると励起スペクトルが線形スピン波計算の結果から逸脱することが理論的に指摘されている [4-8]。実際に磁場中正方格子反強磁性体や、磁氣的フラストレーションを持つ反強磁性体の励起スペクトルが、線形スピン波計算の結果から逸脱することが実験で観測されている [9-12]。このように noncollinear 系では、3 マグノン相互作用により物性が大きく影響を受ける。

正方格子反強磁性体はゼロ磁場や飽和磁場で collinear 構造をとり、磁場中では noncollinear な構造をとる。このため、3 マグノンの相互作用の強さをゼロ (ゼロ磁場・飽和磁場) から十分大きな値まで磁場によって制御できる。一方で三角格子・カゴメ格子などのフラストレーション系では、ゼロ磁場下で既に noncollinear な構造を選ぶため、3 マグノン相互作用はゼロ磁場で有限の値を持つ [7]。したがって正方格子 Heisenberg 反強磁性体は、三角格子などの磁氣的フラストレーションがある系などと比べ、3 マグノン相互作用を調べるの

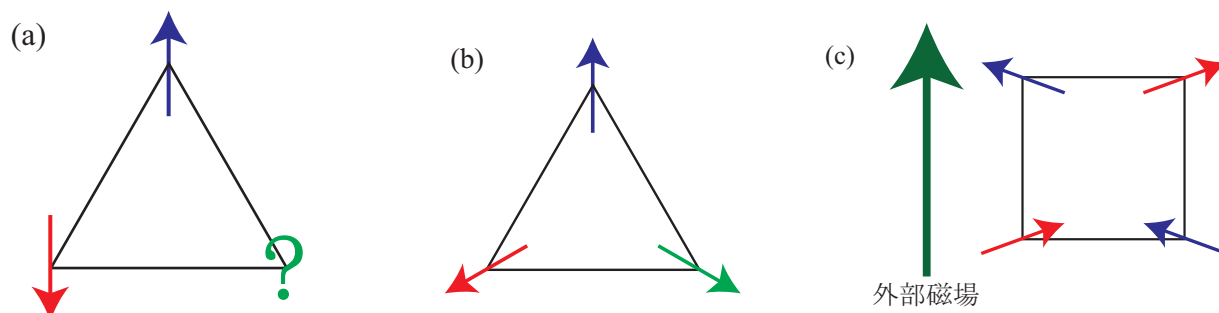


図 1.1 (a) 三角格子反強磁性体上にあるスピンの、隣同士で逆向きに配列しようとする相互作用が働くことを考える。このとき、全てのスピンを隣同士で逆向きに配列させることはできない。このように、交換相互作用が競合することを磁氣的フラストレーションと呼ぶ [1]。磁氣的フラストレーションを持つ系として、最隣接・次近接相互作用が共に反強磁性的な正方格子や、三角格子・カゴメ格子反強磁性体等が挙げられる。(b) 磁氣的フラストレーションを持つ系の noncollinear 構造の例 [三角格子 120 度構造]。(c) 外部磁場下の正方格子反強磁性体は、その交換相互作用と外部磁場が競合する。

に適した系であると言える。

理想的な正方格子反強磁性体 (2次元性が良く、磁気異方性が小さい)[9, 10, 13, 14] の合成や、実験技術の向上から非線形相互作用の実験的な観測が今後期待できる。本研究ではマグノン間相互作用の効果を、磁場下正方格子反強磁性体の励起スペクトルから調べる。

まず、先行研究について簡単に紹介する。飽和磁場未満の磁場下の正方格子反強磁性体は音響モードを持つ一方、飽和磁場下では k^2 スペクトルを持つ。このため励起スペクトルの変化の前兆として、音響モードの曲率が低磁場下では負であるが強磁場下では正となる [図 1.2]。Zhitmirsky らは、この音響モードの曲率の符号の変化に注目した [4-6]。

彼らはこの符号の変化によって、高磁場下において Brillouin ゾーンのある領域では音響モードの1つのマグノンがエネルギーと運動量を保存するような2つのマグノンに崩壊する過程が可能になることを示した [4-6]。また、この崩壊が起こりうる領域と崩壊が禁止される領域の境界付近では強い3マグノンの結合が生じることを指摘した。[4-6, 15]。

非線形相互作用が強い磁場領域で、Zhitmirsky らは vertex 補正を無視した Self-Consistent Born Approximation (SCBA) を施した。しかし Ward-高橋恒等式を破ったために、Goldstone mode にエネルギーギャップを生じさせてしまった [5, 6]。次に、Mourigal らは実部の self-energy 補正を無視する SCBA を試みた [6]。しかし考慮すべき vertex 補正はやはり無視しており、self-energy 補正の実部を更に無視することによって満たされるべき保存則が回復したとは考え難い。

最後に Fuherman らは SCBA をせず、面間相互作用を導入して2次摂動計算を行った [15]。困難の原因である強い結合は2次元性と関連しているため、十分な面間相互作用を導入することによって弱めることができる。しかし、これは面間相互作用のない純粋な2次元系に生じる問題の解決にはなっていない。したがって、現在十分に信頼できる2次元正方格子反強磁性体の強磁場下の励起スペクトルの研究はないといえる。

2次摂動に基づく計算は、一見素朴であるが保存則を満たす近似であるため、SCBA 等 [4-6, 15] と比べ、はるかに信頼できるもの考えられる。したがって本研究では、純2次元正方格子反強磁性体の強磁場下の励起スペクトルを2次摂動計算で調べる方針をとる。但し、摂動論のフォーマリズム自体は、Zhimirsky, Mourigal

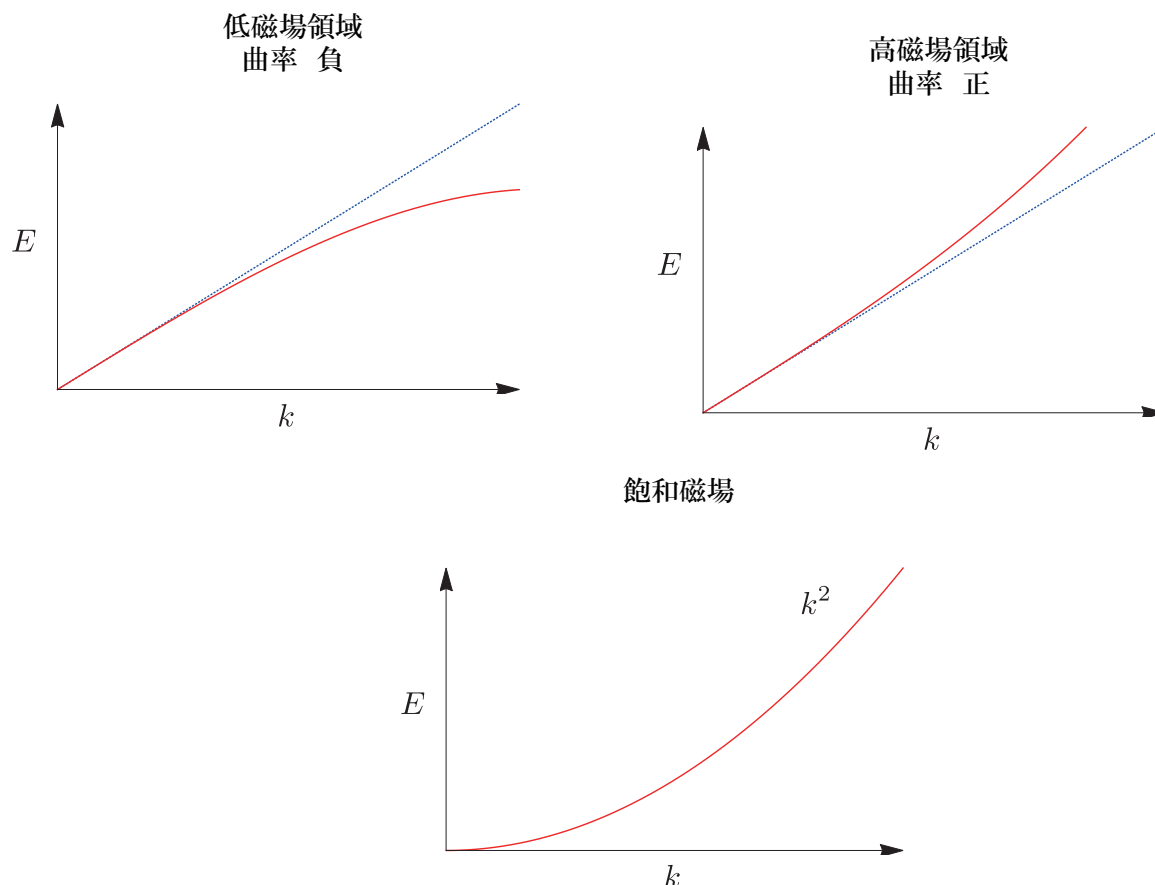


図 1.2 低磁場領域では正方格子反強磁性体の音響モードの曲率は負である。しかし、飽和磁場ではこの音響モードは k^2 スペクトルに変化する。このスペクトル形状の変化の前兆として、音響モードの曲率が磁場増大につれて負から正へと変化する。

らの研究 [5,6] に基づいている。

この研究によって、先行研究が見逃したと考えられる飽和磁場の 3/4 程度の磁場領域で励起スペクトルが極小を持つようになることがわかった [このエネルギーの極小を超流動ヘリウムの“ロトン” [16, 17] ちなみにロトンと表記]。またこのロトンは磁場増大につれてそのエネルギーギャップは急峻にゼロに向かい、相転移を生じることがわかった。

1.2 スピン流

近年、電子の持つスピンを利用した通信技術の省電力化や発電を目標とする、スピントロニクスという研究分野が発展してきている [18, 19]。このような中で、反強磁性体におけるスピン流とその応用が期待を集めている [18, 20]。この応用への期待の大きな理由の一つとして、磁性金属などと比べて Joule 熱の発生が抑えられると考えられることがある。しかしスピントロニクスの大きな問題点の一つとして、スピン流を定義することが難しいことがある。これはスピンの保存量ではないため、電流演算子が電荷保存則から導かれるのと同様にスピン流を定義することができないためである。

そこで Kadanoff と Martin [21] 等の流体力学的立場から、マクロスコピックな保存量からのスピン流の定義が試みられている。その後、主に以下の 2 つに分類できる立場からスピン流の定義がなされている。

1. 磁化などのマクロスコピックな保存量が存在する場合に限定し、その保存則からスピン流密度演算子を定義する [22–25]。
2. 近似的に保存する物理量を用いて、近似的な保存則からスピン流密度演算子を定義する [19, 26]。

この2種類の定義を比較すると、1. は2. と比べ、より限定した場合にしか使えないという欠点があるが、その定義の曖昧さが少ないといえる。本研究ではより定義が明確な、この1. の方法によってスピン流密度演算子を定義し、スピン伝導度を明らかにする。

反強磁性体のスピン伝導度は、1次元 XXZ モデル [24, 25] で盛んに、2次元系では主として Ising 異方性を持つ系で [22] で調べられている。これらの系ではスピンそのものは保存しないが、磁化の磁場方向 (スピンの量子化軸と共線上) 成分が保存する。この限定された、磁化の保存則からスピン流密度演算子を定義することができる。これは磁場方向の磁化の流れとして、スピン流を定義したことに相当する。ミクロスコピックには磁場方向以外の成分も、スピン流を担うが、巨視的領域の平均化の後では、これらは消えてしまう。この方法は、マクロスコピックな立場から粗視化したスピン流を定義することに相当する [22, 23]。

先行研究では、このスピン流密度演算子の定義を用いてスピン伝導度を計算し、その振動数積分に総和則が成立することを示している [22, 23, 25]。また、総和則の成立は定義の正当性を示唆する。しかし、これらは共通して collinear な構造を持つ系に限定された理論であり、スピンの量子化軸と共線方向 (磁場方向) の磁化の保存から、スピン流密度演算子を定義している。

一方、noncollinear な系 (スピンの量子化軸と磁場の方向が異なる) のスピン伝導度の研究は、十分には進んでいない。noncollinear 系では、collinear 系では禁止される3マグノン相互作用が存在する。したがって、スピンの輸送特性への強い非線形効果が期待できるため、非常に興味深い。

ここで noncollinear 系は、スピンの量子化軸と磁場が共線上にない点で、collinear 系とは異なる。このような系について、適用可能なスピン流演算子は明らかではない。ところで、本研究で注目した正方格子 Heisenberg 反強磁性体は、磁化 (磁場と同方向成分) が保存する。したがって、先行研究 [22–25] と同様にして、磁化保存則からスピン流演算子の定義が可能であると考えられる。

本研究では、先行研究 [22, 23] の磁化保存則を用いたスピン流密度演算子の定義を、noncollinear な系に拡張する。この定義を用い、外部磁場下で noncollinear な構造を持つ反強磁性体のスピン伝導度をスピン波理論によって調べる。さらにスピン伝導度の振動数積分に総和則が成立することから、スピン流密度演算子の定義の正当性を示す [27]。この総和則は、collinear 系のスピン伝導や電気伝導度の研究では既に、その成立が確かめられている [22, 23, 25, 28–31]。

さらに、collinear 系 (金属) と同様にしてスピン伝導度 (電気伝導度) の総和と spin stiffness (charge stiffness) の間に関係があることを示す。さらに、noncollinear 系のスピン流密度演算子やスピン伝導度の総和が、collinear 系と同様の形式にまとまることを示す。総和則の成立に加え、これらの結果の整合性は、本論文で提案するスピン流密度演算子の定義の正当性を示している。このスピン流密度演算子は、磁化が保存する系である限り、三角格子やカゴメ格子などにも適用が可能であると考えている。

このスピン流密度演算子を用い、磁場中の正方格子反強磁性体と、三角格子反強磁性体 (比較のため) のスピン伝導度を計算した。この計算の結果から、スピン伝導度の AC 成分は励起スペクトルの形状を強く反映することがわかった。これらの計算は、スピン波理論に基づいて線形応答理論を用いて絶対零度について計算し

ている。

さらに、このスピン伝導度の総和の主要項と非線形補正を考慮したものを計算する。その結果、スピン伝導度の総和の主要項は磁場増大について単調に応答するが、その一方で非線形項の考慮した伝導の総和は非単調にふるまうことを示す。この非単調な振る舞いは、スピンの零点振動と磁場によって、スピンの向きを固定する効果が競合することによって生じたと考えられる。最後にゼロ磁場下の正方格子反強磁性体について、非線形項を考慮した伝導度の計算結果と線形スピン波理論の結果を比較し、ゼロ磁場下のスピン伝導度の非線形効果を示す。

本論文の構成は以下のとおりである。まず 2 章では、スピン波理論を簡単にまとめる。3 章では、外部磁場下のスピン波スペクトルとその非線形効果の計算結果について示す。4 章では noncollinear 系にも適用可能なスピン流密度演算子を定義し、2 章で紹介したスピン波理論を用いて計算したスピン伝導度の結果を示す。

第 2 章

スピン波理論

本章ではまず、磁場中の 2 次元正方格子 Heisenberg 反強磁性体におけるスピン波理論を Zhitomirsky、Mourigal らの先行研究 [5, 6] に基づいて示す。

2.1 線形スピン波理論

まず、線形スピン波スペクトルを導出する [5, 6, 32]。磁場中の再隣接交換相互作用が J の正方格子 Heisenberg 反強磁性体を考える。この系の磁場の方向を z_0 とし、 x_0 - z_0 面内にスピンの並ぶと考える。このとき、交換相互作用と Zeeman エネルギーを最小化するように図 2.1 のように、スピンの磁場方向に cant する。ここで、この図 2.1 に示されるような実験室系のスピン演算子を $(S_i^{x_0}, S_i^{y_0}, S_i^{z_0})$ とする。このスピン演算子によって、正方格子 Heisenberg Hamiltonian は

$$\hat{H} = J \sum_{\langle i, j \rangle} (S_i^{x_0} S_j^{x_0} + S_i^{y_0} S_j^{y_0} + S_i^{z_0} S_j^{z_0}) - H \sum_i S_i^{z_0} \quad (2.1)$$

と書ける [5, 6, 32]。 S_i^μ ($\mu = x_0, y_0, z_0$) は実験室系のスピン演算子であり、以下の交換関係

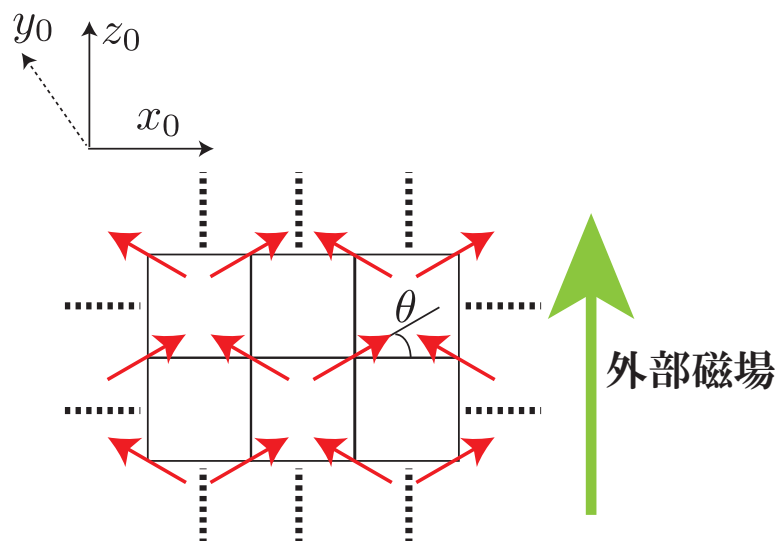


図 2.1 外部磁場下では、交換相互作用と Zeeman エネルギーを最小化するように cant した状態が選ばれる。

$$[S_i^\mu, S_j^\eta] = i\delta_{i,j}\epsilon_{\mu,\eta,\lambda}S_i^\lambda \quad (2.2)$$

を満たす。 $\delta_{i,j}$ は Kronecker デルタ、 $\epsilon_{\mu,\eta,\lambda}$ は Levi Civita の完全反対称テンソルである。

次に y_0 軸方向を固定して x_0 - z_0 面内で、実験室系からスピンの cant した方向に沿った座標系に向かって量子化軸の回転操作

$$\begin{aligned} S_i^{x_0} &= S_i^x \sin \theta + S_i^z e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{R}_i} \cos \theta, \\ S_i^{y_0} &= S_i^y, \\ S_i^{z_0} &= -S_i^x e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{R}_i} \cos \theta + S_i^z \sin \theta, \end{aligned} \quad (2.3)$$

をする [5, 6]。反強磁性秩序波数を $\mathbf{Q} = (\pi, \pi)$ 、回転座標系のスピン演算子を $S_i^\mu(x, y, z)$ 、傾角 (canting angle) を θ と書く [図 2.1]。また θ の具体的な値については、後述する。

波数 $\mathbf{Q} = (\pi, \pi)$ より、式 (2.3) の位相因子 $e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{R}_i}$ は、再隣接スピン同士が逆方向を向くという情報を担っていることがわかる。回転した座標系のスピン演算子は、副格子に関係なく 1 つのスピン演算子で書かれるため、副格子ごとに別のスピン演算子で記述するのと比べて、計算を簡単化することができる [5, 6]。

回転座標系のスピン演算子によって Hamiltonian を書き直すと $\hat{H}$ は

$$\begin{aligned} \hat{H} &= J \sum_{\langle i,j \rangle} [S_i^y S_j^y - \cos 2\theta (S_i^x S_j^x + S_i^z S_j^z)] \\ &\quad + J \sum_{\langle i,j \rangle} \sin 2\theta [e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_i} (S_i^z S_j^x - S_i^x S_j^z)] \\ &\quad - H \sum_i (-S_i^x e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{R}_i} \cos \theta + S_i^z \sin \theta), \end{aligned} \quad (2.4)$$

となる。この回転座標系のスピン演算子について、

$$\begin{aligned} S_i^+ &= S_i^x + iS_i^y, \\ S_i^- &= S_i^x - iS_i^y, \end{aligned} \quad (2.5)$$

とおく。ここに Holstein-Primakoff 変換

$$\begin{aligned} S_j^+ &= \sqrt{2S - a_j^\dagger a_j} a_j, \\ S_j^- &= a_j^\dagger \sqrt{2S - a_j^\dagger a_j}, \\ S_j^z &= S - a_j^\dagger a_j, \end{aligned} \quad (2.6)$$

をする。 $a_i, a_i^\dagger$ は Holstein-Primakoff 演算子 (ボソン演算子) であり、交換関係

$$\begin{aligned} [a_i, a_j^\dagger] &= \delta_{i,j}, \\ [a_i, a_j] &= 0, \\ [a_i^\dagger, a_j^\dagger] &= 0, \end{aligned} \quad (2.7)$$

を満たす。

Holstein-Primakoff 展開を $\hat{\mathcal{H}}$ に施し、その $S^{2-n/2}$ 次の成分を H_n と書くと

$$\hat{\mathcal{H}} = \sum_{n=0}^{\infty} \hat{\mathcal{H}}_n, \quad (2.8)$$

となる。以下、 H_n について議論する。

式 (2.8) の $n = 0$ 成分を、 N をサイト数として書くと

$$\hat{\mathcal{H}}_0 = -2NJS^2 \cos 2\theta - HSN \sin \theta, \quad (2.9)$$

となる。ここで $\hat{\mathcal{H}}_0$ を最小化するように変分

$$\frac{\partial \hat{\mathcal{H}}_0}{\partial \theta} = 0 \quad (2.10)$$

すると、図 2.1 に示す古典的な cant 角 θ

$$\theta = \arcsin[h], \quad h = H/H_s \quad H_s = 8JS, \quad (2.11)$$

が求まる [H_s は飽和磁場]。また、この基底状態のエネルギーの最小化によって $\hat{\mathcal{H}}_1$ は、

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_1 &= 2JS\sqrt{\frac{S}{2}} \left[\sin 2\theta \sum_{\langle i,j \rangle} e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_i} (a_j^\dagger + a_j) + 4h \cos \theta \sum_i e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_i} (a_i^\dagger + a_i) \right] \\ &= 4JS \cos \theta \sqrt{\frac{S}{2}} \sum_{\langle i,j \rangle} e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_i} (a_j + a_j^\dagger) (\sin \theta - h), \end{aligned} \quad (2.12)$$

消失する [5, 6, 32]。

次に、 $\hat{\mathcal{H}}_2$ に、

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_2 &= JS \sum_{\langle i,j \rangle} [\sin^2 \theta (a_i^\dagger a_j + a_i a_j^\dagger) - \cos^2 \theta (a_i^\dagger a_j^\dagger + a_i a_j)] \\ &\quad + JS \sum_{\langle i,j \rangle} \cos 2\theta (n_i + n_j) + 8JSh \sum_i n_i \sin \theta, \end{aligned} \quad (2.13)$$

に注目する [$n_i = a_i^\dagger a_i$]。ここに Fourier 変換

$$a_i = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{k}} a_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i}, \quad (2.14)$$

をすると、 $\hat{\mathcal{H}}_2$ は

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_2 &= \sum_{\mathbf{k}} \left[A_{\mathbf{k}} a_{\mathbf{k}}^\dagger a_{\mathbf{k}} - \frac{B_{\mathbf{k}}}{2} (a_{\mathbf{k}}^\dagger a_{-\mathbf{k}}^\dagger + a_{\mathbf{k}} a_{-\mathbf{k}}) \right], \\ A_{\mathbf{k}} &= 4JS(1 + \gamma_{\mathbf{k}} \sin^2 \theta), \quad B_{\mathbf{k}} = 4JS\gamma_{\mathbf{k}} \cos^2 \theta, \end{aligned} \quad (2.15)$$

となる。更に Bogoliubov 変換

$$a_{\mathbf{k}} = u_{\mathbf{k}} b_{\mathbf{k}} + v_{\mathbf{k}} b_{-\mathbf{k}}^\dagger, \quad [u_{\mathbf{k}}^2 - v_{\mathbf{k}}^2 = 1], \quad (2.16)$$

をする [$b_{\mathbf{k}}, b_{\mathbf{k}}^\dagger$ は Bogoliubov 演算子]。この変換によって $\hat{\mathcal{H}}_2$ は対角化され、

$$\hat{\mathcal{H}}_2 = \sum_{\mathbf{k}} \left[\omega_{\mathbf{k}} b_{\mathbf{k}}^\dagger b_{\mathbf{k}} + \frac{\omega_{\mathbf{k}} - A_{\mathbf{k}}}{2} \right], \quad (2.17)$$

となる。したがって、線形スピン波スペクトル $\omega_{\mathbf{k}}$ は、

$$\begin{aligned} \omega_{\mathbf{k}} &= \sqrt{A_{\mathbf{k}}^2 - B_{\mathbf{k}}^2} = 4JS\sqrt{(1 + \gamma_{\mathbf{k}})(1 - \cos 2\theta \gamma_{\mathbf{k}})}, \\ \gamma_{\mathbf{k}} &= \frac{\cos k_x + \cos k_y}{2}, \quad u_{\mathbf{k}}^2, v_{\mathbf{k}}^2 = \frac{A_{\mathbf{k}}}{2\omega_{\mathbf{k}}} \pm \frac{1}{2}, \quad u_{\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}} = \frac{B_{\mathbf{k}}}{2\omega_{\mathbf{k}}}, \end{aligned} \quad (2.18)$$

と求まる [5, 6, 32]。

式 (2.18) に示した、対称性の高い線上の線形スピン波スペクトルを図 2.2 に示す。この図と式 (2.18) より、

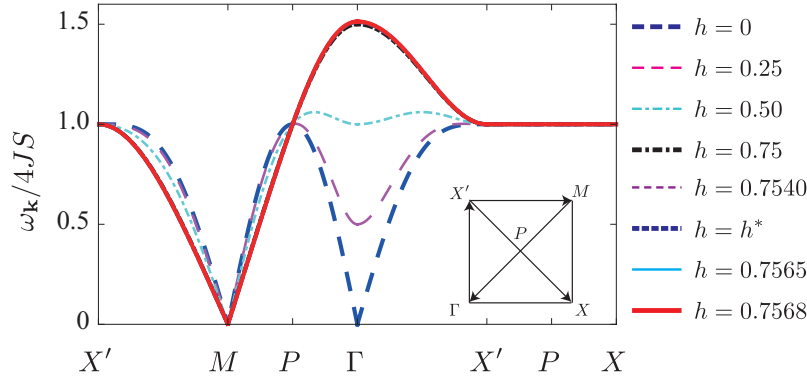


図 2.2 線形スピン波スペクトル。この図から、 X - X' 線上のスペクトルが定数であることがわかる。のちに非線形スペクトルと比較するため、 $h \approx 0.75$ を詳細に調べてある。また $h^* = 2/\sqrt{7} \approx 0.7559$ であり、詳しくは後述する。

ゼロ磁場下で Γ 点と Brillouin ゾーンの端の M 点でギャップレスな Goldstone mode が存在することがわかる。 M 点の Goldstone mode は、外部磁場中でも残る。一方、 Γ 点では磁場と同じ大きさのエネルギーギャップを生じる。また X - X' 線上のあらゆる点では、式 (2.18) に示されるように線形スピン波スペクトルが定数であることがわかる。

線形スピン波スペクトルを $h \approx 0.75$ について詳細に調べても、磁場変化に殆ど応答しない。しかし非線形効果を考慮すると、このわずかな磁場変化によって励起スペクトルが敏感に応答するようになる。この詳細については、3章で述べる。

2.2 非線形効果

ここより、スピン波理論に非線形効果を考慮する。まずこの補正の導出に必要な $\hat{\mathcal{H}}_3$ 、

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_3 = J \sin 2\theta \sqrt{\frac{S}{2}} \sum_{\langle i,j \rangle} e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{R}_i} \left(n_j a_i^\dagger - n_i a_j^\dagger + \text{H.c.} \right) \\ + J \sin 2\theta \sqrt{\frac{S}{2}} \sum_{\langle i,j \rangle} e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{R}_i} \left(\frac{a_i^\dagger n_i - a_j^\dagger n_j}{4} + \text{H.c.} \right) \\ + 2Jh \cos \theta \sqrt{\frac{S}{2}} \sum_i e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{R}_i} (a_i^\dagger n_i + \text{H.c.}), \quad (2.19) \end{aligned}$$

及び $\hat{\mathcal{H}}_4$

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_4 = J \sum_{\langle i,j \rangle} \left[-\cos 2\theta n_i n_j + \cos^2 \theta \left(\frac{a_i^\dagger a_j^\dagger (n_i + n_j)}{4} + \text{H.c.} \right) \right. \\ \left. - \sin^2 \theta \left(\frac{a_i^\dagger (n_i + n_j) a_j}{4} + \text{H.c.} \right) \right], \quad (2.20) \end{aligned}$$

を導入する [5, 6]。これら $\hat{\mathcal{H}}_3$ 、 $\hat{\mathcal{H}}_4$ を使い、励起スペクトルの非線形補正を導出する。

まず、 $\hat{\mathcal{H}}_3$ を Fourier 変換すると、

$$\hat{\mathcal{H}}_3 = -2\sqrt{\frac{S}{2N}} J \sin 2\theta \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{p}} (a_{\mathbf{k}}^\dagger a_{\mathbf{p}} a_{\mathbf{q}} + a_{-\mathbf{q}}^\dagger a_{-\mathbf{p}}^\dagger a_{-\mathbf{k}}) (\gamma_{\mathbf{p}} + \gamma_{\mathbf{q}}), \quad (2.21)$$

となる。これを3マグノン相互作用と呼ぶ。ここで、 $\mathbf{q} = \mathbf{Q} + \mathbf{k} - \mathbf{p}$ とおく。更に Bogoliubov 変換すると、

$$\begin{aligned}\hat{\mathcal{H}}_3 = & \frac{1}{2!} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{p}} (b_{\mathbf{p}}^\dagger b_{\mathbf{q}}^\dagger b_{\mathbf{k}} + \text{H.c.}) \Phi_1(\mathbf{k}, \mathbf{q} = \mathbf{Q} + \mathbf{k} - \mathbf{p}, \mathbf{p}) \\ & + \frac{1}{3!} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{p}} (b_{\mathbf{k}}^\dagger b_{\mathbf{q}}^\dagger b_{\mathbf{p}}^\dagger + \text{H.c.}) \Phi_2(\mathbf{k}, \mathbf{q} = \mathbf{Q} - \mathbf{k} - \mathbf{p}, \mathbf{p}),\end{aligned}\quad (2.22)$$

が得られる [5,6]。ここで $\Phi_1(1, 2, 3)$ 、 $\Phi_2(1, 2, 3)$ は、

$$\begin{aligned}\Phi_1(1, 2, 3) = & -\frac{H \cos \theta}{\sqrt{2NS}} [\gamma_1(u_1 + v_1)(u_2 v_3 + u_3 v_2) \\ & + \gamma_2(u_2 + v_2)(u_1 u_3 + v_1 v_3) + \gamma_3(u_3 + v_3)(u_1 u_2 + v_1 v_2)],\end{aligned}\quad (2.23)$$

$$\begin{aligned}\Phi_2(1, 2, 3) = & -\frac{H \cos \theta}{\sqrt{2NS}} [\gamma_1(u_1 + v_1)(u_2 v_3 + u_3 v_2) \\ & + \gamma_2(u_2 + v_2)(u_1 v_3 + u_3 v_1) + \gamma_3(u_3 + v_3)(u_2 v_1 + u_1 v_2)],\end{aligned}\quad (2.24)$$

で与えられる。

この $\hat{\mathcal{H}}_3$ から、図 2.3 のに示される過程が生じる。この相互作用は式 (2.19) より、ゼロ磁場下 ($\sin \theta = 0$) や飽和磁場下 ($\sin \theta = 1$) で消失していることがわかる。この消失は偶然ではなく、collinear な構造のスピンの持つ $\text{SO}(2)$ 対称性から3マグノン相互作用は禁止されることによる [4]。

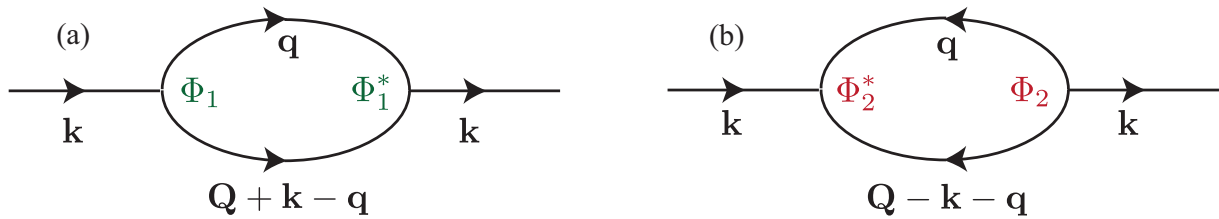


図 2.3 $\hat{\mathcal{H}}_3$ から生じる 2 つの self-energy。

また、図 2.3 のそれぞれに示される 3 マグノン相互作用の self-energy は以下の 2 つの形

$$\begin{aligned}\Sigma^{(1)}(\mathbf{k}, \omega) &= \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{q}} \frac{|\Phi_1(\mathbf{k}, \mathbf{Q} + \mathbf{k} - \mathbf{q}, \mathbf{q})|^2}{\omega - \omega_{\mathbf{Q} + \mathbf{k} - \mathbf{q}} - \omega_{\mathbf{q}} + i0}, \\ \Sigma^{(2)}(\mathbf{k}, \omega) &= -\frac{1}{2} \sum_{\mathbf{q}} \frac{|\Phi_2(\mathbf{k}, \mathbf{Q} - \mathbf{k} - \mathbf{q}, \mathbf{q})|^2}{\omega + \omega_{\mathbf{Q} - \mathbf{k} - \mathbf{q}} + \omega_{\mathbf{q}} - i0},\end{aligned}\quad (2.25)$$

に書ける [5,6]。したがって、3 マグノン相互作用による非線形補正は、

$$\delta\epsilon_{\mathbf{k}}^{(3)} = \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{q}} \left[\frac{|\Phi_1(\mathbf{k}, \mathbf{Q} + \mathbf{k} - \mathbf{q}, \mathbf{q})|^2}{\omega - \omega_{\mathbf{Q} + \mathbf{k} - \mathbf{q}} - \omega_{\mathbf{q}} + i0} - \frac{|\Phi_2(\mathbf{k}, \mathbf{Q} - \mathbf{k} - \mathbf{q}, \mathbf{q})|^2}{\omega + \omega_{\mathbf{Q} - \mathbf{k} - \mathbf{q}} + \omega_{\mathbf{q}} - i0} \right], \quad (2.26)$$

となる [5,6]。

式 (2.25) より、中間状態に遷移するのに必要なエネルギーが小さいときや、遷移行行列要素が大きい程、強い self-energy 補正を与えることがわかる。また本研究で注目する $h \approx 0.75$ では、1 マグノン状態と 2 マグノン中間状態のエネルギー差が無限小の過程がある波数付近に無数に存在するようになる。このため、 $\Sigma^{(1)}(\mathbf{k}, \omega)$ の非線形補正がある波数付近で非常に強くなる。詳細については結果・考察で示す。

次に、 $\hat{\mathcal{H}}_4$ を考える。まず、以下の平均値を

$$\begin{aligned} n &= \langle a_i^\dagger a_i \rangle = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}}^2, \\ \delta &= \langle a_i a_i \rangle = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} u_{\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}}, \\ m &= \langle a_i^\dagger a_j \rangle = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}}^2 \gamma_{\mathbf{k}}, \\ \Delta &= \langle a_i a_j \rangle = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} u_{\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}} \gamma_{\mathbf{k}}, \end{aligned} \quad (2.27)$$

定義する。式 (2.27) の平均値を用いて、 $\hat{\mathcal{H}}_4$ に Hartree-Fock 補正

$$a_i^\dagger (n_i + n_j) a_j \approx 2m(n_i + n_j) + 4na_i^\dagger a_j - 4nm + \delta(a_i^\dagger a_j^\dagger + a_i a_j) + \Delta(a_i^{\dagger 2} + a_j^2) - 2\delta\Delta, \quad (2.28)$$

$$a_i^\dagger a_j^\dagger (n_i + n_j) \approx 2\Delta(n_i + n_j) + 4na_i^\dagger a_j^\dagger - 4n\Delta + \delta(a_i^\dagger a_j + a_i a_j^\dagger) + m(a_i^{\dagger 2} + a_j^{\dagger 2}) - 2\delta m, \quad (2.29)$$

$$n_i n_j \approx 4na_i a_j + \delta(a_i^\dagger a_j + a_i a_j^\dagger) + \Delta(a_i a_j + a_i^\dagger a_j^\dagger) - n^2 - m^2 - \Delta^2, \quad (2.30)$$

を考慮する。このとき $\langle \hat{\mathcal{H}}_4 \rangle$ は、

$$\begin{aligned} \langle \hat{\mathcal{H}}_4 \rangle &= J \sum_{\langle i,j \rangle} [(\Delta - n) \cos^2 \theta + (n - m) \sin^2 \theta] (n_i + n_j) \\ &\quad + J \sum_{\langle i,j \rangle} \left[\left(\frac{\delta}{2} - m \right) \cos^2 \theta + (m - n) \sin^2 \theta \right] (a_i^\dagger a_j + a_i a_j^\dagger) \\ &\quad + J \sum_{\langle i,j \rangle} \left[(n - \Delta) \cos^2 \theta + \left(\Delta - \frac{\delta}{2} \right) \sin^2 \theta \right] (a_i^\dagger a_j^\dagger + a_i a_j) \\ &\quad + J \sum_{\langle i,j \rangle} [m \cos^2 \theta - \Delta \sin^2 \theta] (a_i^{\dagger 2} + a_i^2), \end{aligned} \quad (2.31)$$

となる。

さらに θ の量子補正から、 $\hat{\mathcal{H}}_2$ の補正を考える。まず、量子補正を考慮した cant 角 θ' を求める [5, 6, 27, 32]。これは、基底状態のエネルギーの最小化に量子補正

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial \theta'} \left(\hat{\mathcal{H}}_0 + \sum_{\mathbf{k}} \frac{\omega_{\mathbf{k}} - A_{\mathbf{k}}}{2} \right) &= 8JS^2 N \cos \theta' (\sin \theta' - h) \\ &\quad + 8JSN \sin \theta' \cos \theta' (m + \Delta - n) \\ &= 8JS^2 N \cos \theta' \left[\sin \theta' \left(1 - \frac{n - m - \Delta}{S} \right) - h \right] \\ &= 0 \end{aligned} \quad (2.32)$$

を考慮することにより、以下のように

$$\sin \theta' = \sin \theta \left(1 + \frac{w}{S} \right) \quad (2.33)$$

求まる。ここで、簡単のために

$$w = n - m - \Delta \quad (2.34)$$

とおいた。ここで θ の量子補正を $\hat{\mathcal{H}}_2$ に考慮すると、以下の補正項 $\delta\hat{\mathcal{H}}_2$ を得る。

$$\begin{aligned}\delta\hat{\mathcal{H}}_2 = & 2J \sin^2 \theta w \sum_{\langle i,j \rangle} [(a_i^\dagger a_j + a_i a_j^\dagger) + (a_i^\dagger a_j^\dagger + a_i a_j) - 2(n_i + n_j)] \\ & + 8Jhw \sum_i n_i \sin \theta\end{aligned}\quad (2.35)$$

また、 θ の量子補正により

$$\hat{\mathcal{H}}_1 + \langle \hat{\mathcal{H}}_3 \rangle = 0, \quad (2.36)$$

となることが確認できる。ここで $\langle \hat{\mathcal{H}}_3 \rangle$ は

$$\langle \hat{\mathcal{H}}_3 \rangle = -4J \cos \theta \sin \theta \sqrt{\frac{S}{2}} \sum_{\langle i,j \rangle} e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_i} (a_j + a_j^\dagger) (n - m - \Delta) \quad (2.37)$$

である [5, 6]。

このように、 $\hat{\mathcal{H}}_4$ の Hartree-Fock 補正と θ の量子補正の考慮によって $\delta\epsilon_{\mathbf{k}}^{\text{HF}}$ は、

$$\begin{aligned}\delta\epsilon_{\mathbf{k}}^{\text{HF}}/4J = & \frac{-n + \Delta + \sin^2 \theta (m + \Delta)(1 - 2\gamma_{\mathbf{k}} \cos^2 \theta)}{\sqrt{(1 + \gamma_{\mathbf{k}})(1 - \cos 2\theta\gamma_{\mathbf{k}})}} \\ & + \frac{\gamma_{\mathbf{k}}^2 [n - m \sin^2 \theta (3 - 2 \sin^2 \theta) - \Delta(1 - \sin^2 \theta + \sin^4 \theta)]}{\sqrt{(1 + \gamma_{\mathbf{k}})(1 - \cos 2\theta\gamma_{\mathbf{k}})}},\end{aligned}\quad (2.38)$$

となる。また $\delta\epsilon_{\mathbf{k}}^{(3)}$ と $\delta\epsilon_{\mathbf{k}}^{\text{HF}}$ によって、補正された励起スペクトル:

$$\bar{\epsilon}_{\mathbf{k}} = \epsilon_{\mathbf{k}} + \delta\epsilon_{\mathbf{k}}^{(3)} + \delta\epsilon_{\mathbf{k}}^{\text{HF}}, \quad (2.39)$$

が求まる [5, 6]。

ここでは、ゼロ磁場下の $\bar{\epsilon}_{\mathbf{k}}$ を求める。ゼロ磁場下では collinear な Néel 構造をとるため、対称性から 3 マグノン相互作用は消失する。このため、スピン波スペクトルの量子補正には $\delta\epsilon_{\mathbf{k}}^{\text{HF}}$ のみ考慮すればよい。ここで、ゼロ磁場下の $\delta\epsilon_{\mathbf{k}}^{\text{HF}}$ は、

$$\delta\epsilon_{\mathbf{k}}^{\text{HF}}|_{h=0} = 4J(\Delta - n)\sqrt{1 - \gamma_{\mathbf{k}}^2} \quad (2.40)$$

$$= \frac{\Delta - n}{S} \omega_{\mathbf{k}}, \quad (2.41)$$

となる。したがって、ゼロ磁場下の 2 次摂動の範囲内での非線形スピン波スペクトルは、線形スピン波スペクトルの全体を Z 因子

$$Z = 1 + \frac{\Delta - n}{S}, \quad (2.42)$$

だけスケール変換すればよいことがわかる。実際に高温超伝導体の母物質である La_2CuO_4 の磁気励起スペクトルは線形スピン波スペクトルに上記のようにわずかな補正をしたものと良い一致をしている [2]。

ここで線形スピン波理論は、マグノン間相互作用が十分に小さいときにより近似になる。したがってマグノン・マグノン相互作用が十分に小さいゼロ磁場下では、実験で観測された励起スペクトル [2] は線形スピン波計算に上記の僅かな補正をすることによって良い近似になる。しかし、ここに磁場を印加すると noncollinear

な構造をとるため、3 マグノン相互作用が誘起される。この相互作用は磁場増大につれて強くなり、実験的に観測される励起スペクトルは線形スピン波近似から逸脱する [9,10]。

このように3 マグノン相互作用はゼロ磁場や飽和磁場ではゼロであるが、 $h \approx 0.75$ に向かって非常に強くなる。正方格子反強磁性体は3 マグノン相互作用の強さをゼロから十分大きい値まで磁場によって制御することができる。本研究では磁場下の正方格子に焦点を当て、その3 マグノン相互作用のスピン波スペクトルへ与える影響について調べる。

第 3 章

3 マグノン相互作用と “ロトン”

本章では 3 マグノン相互作用が強くなる強磁場領域に焦点を当て、励起スペクトルを詳細に調べる。この結果、 $h \approx 0.75$ で M 点付近に超流動ヘリウムのロトンのようなエネルギー極小を生じることがわかった。このロトンは磁場に敏感に応答し、ある磁場で完全にソフト化することが予測される。これは新しい量子相転移を示唆している。このロトンの実験的観測の可能性や、考えられる新しい基底状態について議論する。また本章の内容は、論文を投稿中 [33] である。

3.1 3 マグノン相互作用と外部磁場

本節では、3 マグノン相互作用が高磁場下で強くなることを示す。この原因は主に、1. $h \gtrsim 0.75$ でマグノンの崩壊が可能になることと 2. $\Phi_1(1, 2, 3)$ が $h \approx 0.75$ で大きな値をとることによる。ここでは、上記の 2 つの要因について議論する。

3.1.1 超流動ヘリウムの準粒子崩壊

この不安定性の議論のために、超流動ヘリウムにおける準粒子崩壊について Lifshitz-Pitaevskii の議論に基づいて議論する [16]。

まず、音響モードに生じる以下崩壊過程 [波数 $\mathbf{k}$ のエネルギーを $\omega_{0,\mathbf{k}}$ と書き、波数 $\mathbf{k}$ の 1 粒子状態から、波数 $\mathbf{q}$ と $\mathbf{k} - \mathbf{q}$ の 2 粒子状態へと崩壊する過程を考える。この過程では、エネルギー・運動量がともに保存することを考える。]

$$\omega_{0,\mathbf{k}} - \omega_{0,\mathbf{q}} - \omega_{0,\mathbf{k}-\mathbf{q}} = 0, \quad (3.1)$$

を考える。音響モードを k の 3 次までで近似すると、

$$\omega_{\mathbf{k}} \approx c_0 k + \alpha_0 k^3, \quad (3.2)$$

となる [c_0 と α_0 は定数]。したがって、式 (3.1) を満たす過程が存在するためには

$$c_0(k - q - |\mathbf{k} - \mathbf{q}|) + \alpha_0(k^3 - q^3 - |\mathbf{k} - \mathbf{q}|^3) \approx 0, \quad (3.3)$$

を満たす必要がある。

ここで

$$k^3 - q^3 - |k - q|^3 = -3kq(k - q), \quad (3.4)$$

であり、また、

$$\begin{aligned} |\mathbf{k} - \mathbf{q}| &\approx [(k - q)^2 - 2kq(1 - \cos \psi)]^{\frac{1}{2}} \\ &= (k - q) \left[1 - \frac{4kq}{(k - q)^2} \sin^2 \frac{\psi}{2} \right]^{\frac{1}{2}} \\ &\approx k - q - \frac{kq}{k - q} \psi^2, \end{aligned} \quad (3.5)$$

であることから [ψ は方位角を指す]、式 (3.3) は、

$$c_0 \frac{kq}{k - q} \left[\psi^2 - 3 \frac{\alpha_0}{c_0} (k - q)^2 \right] \approx 0, \quad (3.6)$$

となる。したがって式 (3.6) の等式を満たす過程が存在するためには、 $\alpha_0 \geq 0$ である必要がある。したがって、音響モードの曲率が正である場合に1つの準粒子が2つの準粒子に崩壊する過程が可能になる。実際に以上のような崩壊過程は、曲率が正である場合に可能であることが図 1.2 から読み取ることができる。

3.1.2 マグノンの崩壊と音響モードの曲率

前小節で議論した超流動ヘリウムにおける準粒子の崩壊 [16] と同様にして、音響モードが正の曲率を持つ場合1マグノン状態から2マグノン状態への崩壊が可能になる。Zhitmirsky、Mourigal らの先行研究 [4–6] は、 M 点 $[(\pi, \pi)]$ 付近の音響モードの曲率が高磁場領域で正になることと、マグノンの崩壊を議論している。本小節では、先行研究 [4–6] に基づいて、曲率の変化と強い3マグノン相互作用について議論する。

まず正方格子反強磁性体の線形スピン波スペクトルを波数展開する。まず $\gamma_{\mathbf{k}}$ を $k = |\mathbf{k}|$ の4次までについて展開すると

$$\begin{aligned} \gamma_{\mathbf{k}} &= \frac{\cos k_x + \cos k_y}{2} \\ &\approx \frac{1}{2} \left[1 - \frac{k_x^2}{2!} + \frac{k_x^4}{4!} + 1 - \frac{k_y^2}{2!} + \frac{k_y^4}{4!} \right] \\ &= 1 + \frac{1}{2} \left[-\frac{k_x^2 + k_y^2}{2!} + \frac{k_x^4 + k_y^4}{4!} \right], \end{aligned} \quad (3.7)$$

となる。ここで、 $(k_x, k_y) = k(\cos \phi, \sin \phi)$ とおくと、

$$\gamma_{\mathbf{k}} \approx 1 + \frac{1}{2} \left[-\frac{k^2}{2!} + \frac{k^4(\cos^4 \phi + \sin^4 \phi)}{4!} \right] \quad (3.8)$$

となる。

$$\cos^4 \phi + \sin^4 \phi = \frac{\cos 4\phi + 3}{4}, \quad (3.9)$$

であるので、 $\gamma_{\mathbf{k}}$ は

$$\gamma_{\mathbf{k}} \approx 1 + \frac{1}{2} \left[-\frac{k^2}{2!} + \frac{k^4}{4!} \frac{\cos 4\phi + 3}{4} \right], \quad (3.10)$$

となる。

式 (3.10) より、 M 点付近の線形スピン波スペクトル [式 (2.18)] を、式 (3.10) を用いて展開すると

$$\begin{aligned}\omega_{\mathbf{Q}+\mathbf{k}} &= 4JS\sqrt{(1-\gamma_{\mathbf{k}})(1+\cos 2\theta\gamma_{\mathbf{k}})} \\ &\approx 4JS\left[\frac{1}{2}\left(\frac{k^2}{2!}-\frac{k^4}{4!}\frac{\cos 4\phi+3}{4}\right)\left(2\cos^2\theta-\cos 2\theta\frac{k^2}{4}\right)\right]^{\frac{1}{2}} \\ &= 4JS\frac{\cos\theta k}{\sqrt{2}}\left[\left(1-\frac{k^2}{12}\frac{\cos 4\phi+3}{4}\right)\left(1-(1-\tan^2\theta)\frac{k^2}{8}\right)\right]^{\frac{1}{2}},\end{aligned}\quad (3.11)$$

となる。上式を Taylor 展開すると、

$$\begin{aligned}\omega_{\mathbf{Q}+\mathbf{k}} &\approx 2JS\sqrt{2}\cos\theta k\left[1-\frac{k^2}{12}\frac{\cos 4\phi+3}{8}-(1-\tan^2\theta)\frac{k^2}{16}\right] \\ &= 2JS\sqrt{2}\cos\theta k\left[1+\frac{k^2}{16}\left(\tan^2\theta-\frac{\cos 4\phi+9}{6}\right)\right],\end{aligned}\quad (3.12)$$

となる。式 (3.12) より、 $\phi = \pi/4 + n\pi/2$ (n は整数) のとき、 k^3 の係数が最大になることから、 Γ - M 線上で曲率が最大になることがわかる。また $\tan\theta$ はゼロ磁場でゼロあるが、磁場増大につれてその値は単調に増大する。この $\tan\theta$ の変化に伴い、高磁場と低磁場で曲率の符号変化を生じる。式 (3.12) より、この符号変化は曲率が最も大きい Γ - M 線上 ($\cos\phi = -1$) ではじめに生じることがわかる。

したがって Γ - M 線上 ($\cos\phi = -1$) の波数展開は、

$$\omega_{\mathbf{Q}+\mathbf{k}} \approx 2JS\sqrt{2}\cos\theta k\left[1+\frac{k^2}{16}\left(\tan^2\theta-\frac{4}{3}\right)\right],\quad (3.13)$$

となる。これより、

$$\tan^2\theta - \frac{4}{3} = \frac{3h^2 - 4 + 4h^2}{3(1-h^2)} = \frac{7h^2 - 4}{3(1-h^2)},\quad (3.14)$$

となるため、曲率の符号の変化が

$$h^* = 2/\sqrt{7} \approx 0.7559\quad (3.15)$$

で初めて生じることがわかる。

この曲率が正になる h^* より高磁場では、超流動ヘリウムの議論 [16] と同様にして図 2.3 初期状態と中間状態でエネルギー保存則と運動量保存則が共に満たされる過程

$$\omega_{\mathbf{k}} = \omega_{\mathbf{q}} + \omega_{\mathbf{k}-\mathbf{q}+\mathbf{Q}}\quad (3.16)$$

が可能になる [4-6]。このような過程の出現により、高磁場領域では 1 マグノン状態が 2 マグノン状態への崩壊の不安定性を生じる。

またこの崩壊が可能な領域と不可能な領域の境界付近に、強い 3 マグノンの結合が生じる [4-6]。これは、初期状態と中間状態のエネルギー差が無限小の過程が無数に存在するためである (式 (2.25) より、このエネルギー差が小さいことで非線形補正が強くなることがわかる)。

3.1.3 3 マグノン相互作用の係数の磁場依存性

ここでは、この 3 マグノン相互作用の磁場依存性を考えるため、 $\Phi_1(1, 2, 3)$ (3 マグノン相互作用の係数) の磁場依存性を考える。式 (2.23)、式 (2.24) より、

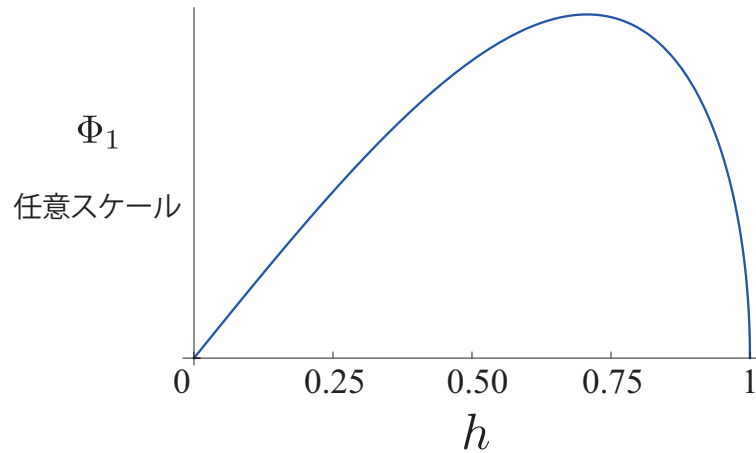


図 3.1 3 マグノン相互作用の係数 $\Phi_1(1, 2, 3)$ の磁場依存性。この図から、 $h \approx 0.75$ 程度で 3 マグノン相互作用が強くなることがわかる。

$$\Phi_1(1, 2, 3) \propto \sin 2\theta \quad (3.17)$$

となる [図 2.3(a) は (b) と比べ、 $h \approx 0.75$ でより強い非線形補正を生じるため、図 2.3(a) に焦点を当てて議論を進める]。この磁場依存性は図 3.1 に示す。図から、 $h \approx 0.75$ 付近で $\Phi_\alpha(1, 2, 3)$ ($\alpha = 1, 2$) が最も大きい値をとることがわかる。つまり $h \approx 0.75$ 付近ではマグノンの崩壊が可能になるのに加え、3 マグノン相互作用が特に強くなる。したがって、この磁場領域では 3 マグノン相互作用が非常に重要になることが予測される。次節では、 $h \approx 0.75$ 付近の 3 マグノン相互作用の強い波数領域の非線形励起スペクトルの詳細を議論する。

3.2 励起スペクトルの非線形補正とロトン

本節では、実際に計算した非線形スピン波スペクトル計算結果を示す。この計算から M 点付近に $h \approx 0.75$ でロトン的な極小が生じ、磁場の変化に敏感に応答することがわかった。ここでは、このロトンの詳細やその観測可能性について焦点を当てて議論する [33]。

3.2.1 ロトンの出現とそのソフト化

本小節では、非線形スピン波スペクトルの計算で見つけたロトンに焦点を当て、磁場依存性を議論する [33]。

各磁場中の $\bar{\epsilon}_{\mathbf{k}}$ ($S = 1/2$) を、対称性の高い線上で調べたものを図 3.2(a) に、 Γ - M 線上、 M 点付近の拡大図を図 3.2(b) に示す。図 3.2(a)(b) から、 $h \approx 0.75$ で殆どの高対称軸上でスペクトルは殆ど完全に重なっているが、 Γ - M 線上 M 点付近では僅かな磁場変化に敏感に応答していることがわかる。さらに、 Γ - M 線上の M 点付近にエネルギー極小を生じていることが示唆される。

Brillouin ゾーン全体の $\bar{\epsilon}_{\mathbf{k}}$ ($h = 0.7540$, $S = 1/2$) を図 3.3(a) に、比較のため線形スピン波スペクトル $\omega_{\mathbf{k}}$ ($h = 0.7540$, $S = 1/2$) を図 3.3(b) に示す。図 3.3(a)(b) を比較すると、曲率の最も大きい Γ - M 線方向を中心に非線形補正が強くなっていることがわかる。

更に高磁場側における、 $\bar{\epsilon}_{\mathbf{k}}$ ($h = 0.7568$, $S = 1/2$) の Brillouin ゾーンの全体、 M 点付近の拡大図を図 3.3(c)(d) に示す。これらの励起スペクトルを明確にするため、等エネルギー線を引いている。図 3.3(d) より、

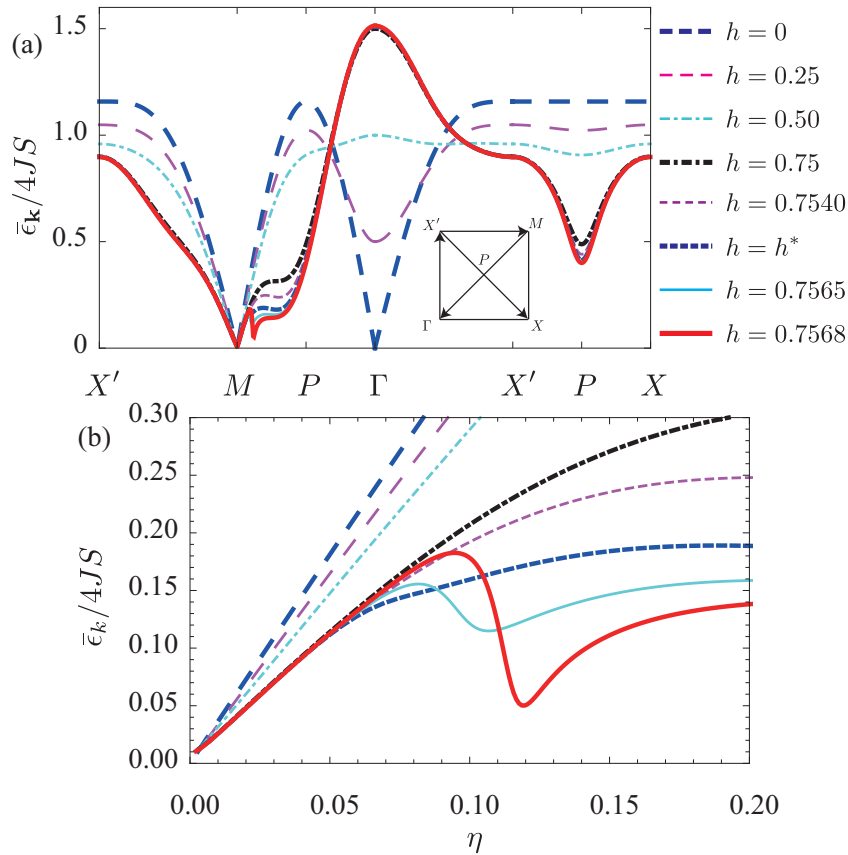


図 3.2 (a) 各磁場下の高対称軸上の $\bar{\epsilon}_{\mathbf{k}}$ ($S = 1/2$) (参考文献 Y. Kubo and S. Kurihara, Phys. Rev. B **90**, 014421 (2014)[33] 図 1 より、引用)。磁場領域 $h \approx 0.75$ で P 点 ($\pi/2, \pi/2$) に見かけ上の極小、 M 点付近に極小を生じることがわかる。(b) Γ - M 線上 [η は波数 $\pi(1-\eta, 1-\eta)$] の M 点付近の拡大図 (参考文献 Y. Kubo and S. Kurihara, Phys. Rev. B **90**, 014421 (2014)[33] 図 1 より、引用)。この図はヘリウムのロトンスペクトルと類似する。”ロトン”は磁場に敏感に応答し、エネルギーギャップは急峻にゼロに向かう。

図 3.2 で観測した極小値は Brillouin ゾーン全体から見てもエネルギー極小値になっていることがわかる [超流動ヘリウムのエネルギー極小であるロトン [16, 17] にちなんで、“ロトン”と表記]。

図 3.3(c)(d) で観測されたロトンの波数付近の、 Γ - M 線に垂直な線上の $\bar{\epsilon}_{\mathbf{k}}$ ($h = 0.7568$, $S = 1/2$) を図 3.3(e) に示す。図 3.3(e) より、ロトンは、 Γ - M 線に垂直な方向に谷のような構造を持つ。この鋭い構造の起源について、次節 [3.3.4] で議論する。

またこのエネルギー極小は僅かな磁場変化に敏感に応答することが、図 3.2(b) よりわかる。これは、3 マグノン相互作用の係数 $\Phi_1(1, 2, 3)$ が、磁場によって 0 から不安定性を引き起こすのに十分な値まで、連続的に制御できるためである [図 3.1 参照]。このような $\Phi_1(1, 2, 3)$ の性質は、序章の冒頭に紹介したように、この系の特別な事情によるものである。物性物理学において、これほどまでに制御性があることは非常に稀である。この意味で、磁場下正方格子反強磁性体は極めてユニークな系であり、特別な重要性を持つ。また比熱・中性子散乱実験によって、このロトンの変化による強い磁場依存性を観測することが期待できる。

3.2.2 P 点: X - X' 線上の見かけ上の極小

本小節では、 X - X' 、 Γ - M 線の交点 ($\pi/2, \pi/2$) (以降 P 点と呼ぶ) に焦点を当てて議論する [33]。

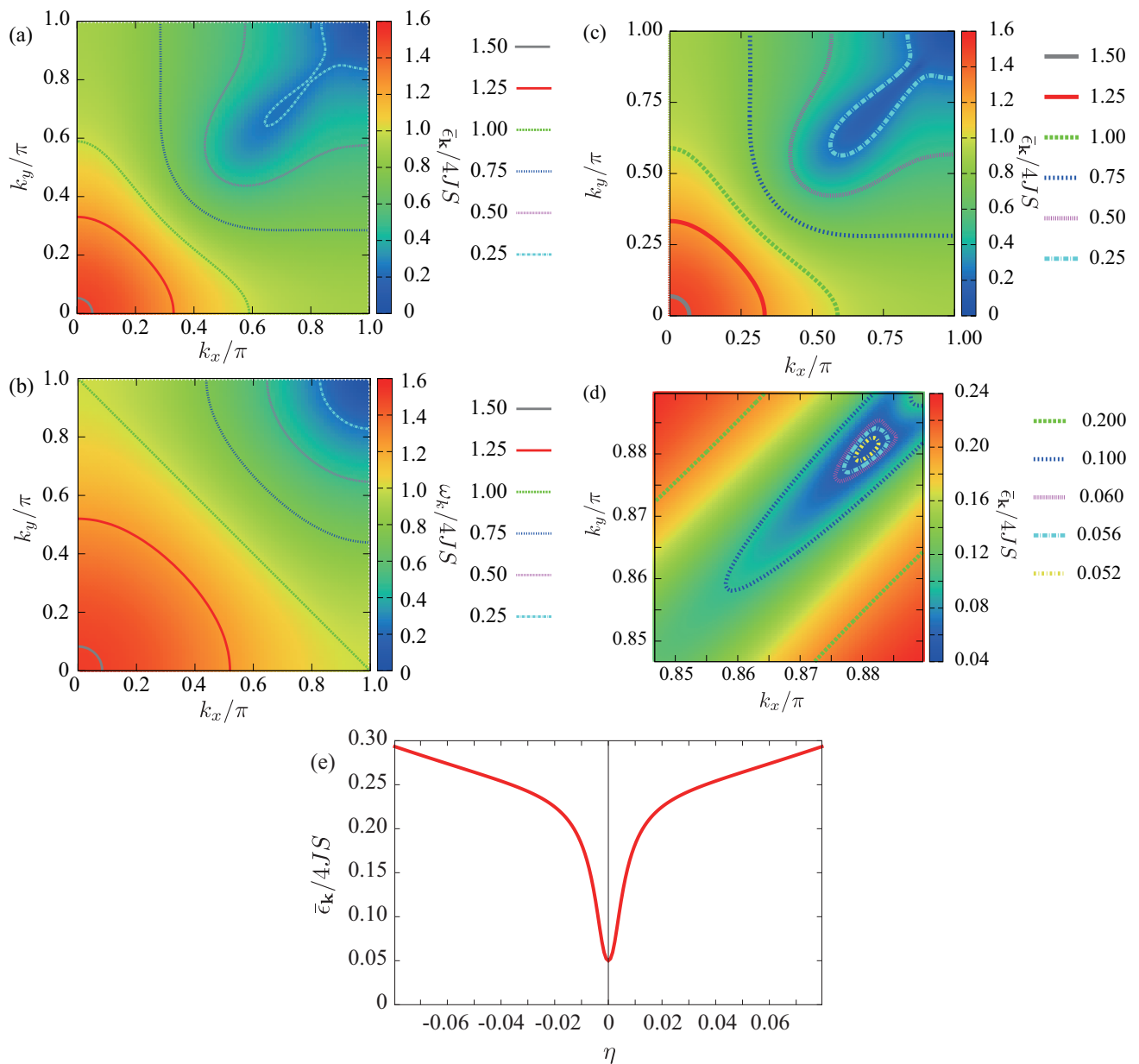


図 3.3 (a) Brillouin ゾーン全体の $\bar{\epsilon}_{\mathbf{k}}$ ($h = 0.7540, S = 1/2$) を、等エネルギー線と共に示す。(b) Brillouin ゾーン全体の線形スピン波スペクトル $\omega_{\mathbf{k}}$ ($h = 0.7540, S = 1/2$) を示す。(a)(b) の比較から強磁場下で非線形補正が、 Γ - M 線を中心に強くなっていることがわかる。(c) Brillouin ゾーン全体の $\bar{\epsilon}_{\mathbf{k}}$ ($h = 0.7568, S = 1/2$) を、等エネルギー線と共に示す (参考文献 Y. Kubo and S. Kurihara, Phys. Rev. B **90**, 014421 (2014) [33] 図 2 より、引用)。(d) M 点付近の $\bar{\epsilon}_{\mathbf{k}}$ ($h = 0.7568, S = 1/2$) の拡大図を示す (参考文献 Y. Kubo and S. Kurihara, Phys. Rev. B **90**, 014421 (2014) [33] 図 2 より、引用)。ここから、図 3.2(b) の極小値が Brillouin ゾーン全体から見ても極小値になっていることがわかる。(e) Γ - M 線に垂直な線上 $[\pi(\eta_{\text{rot}} + \eta), \eta_{\text{rot}} - \eta]$ のロトン波数 ($\pi\eta_{\text{rot}}(1, 1)$) 付近のエネルギースペクトル $\bar{\epsilon}_{\mathbf{k}}$ ($h = 0.7568, S = 1/2$) (参考文献 Y. Kubo and S. Kurihara, Phys. Rev. B **90**, 014421 (2014) [33] 図 2 より、引用)。この図から、 Γ - M 線に垂直方向に深い谷構造を持つことがわかる。

図 3.3(a) より、この P 点は $X-X'$ 線上では極小値であるが $\Gamma-M$ 線上では極小値にはなっていないことがわかる。ここから P 点そのものは極小ではなく、 $X-X'$ 線上での見かけ上の極小となっていることがわかる。ここで線形スピン波スペクトルは $X-X'$ 線上では定数のため [式 (2.18)、図 2.2 参照]、見かけ上の極小は非線形補正によって生じたことがわかる。ここで $X-X'$ 線上では、 $\Gamma-M$ 線と交わる P 点で、曲率が最も大きくなっている (式 (3.12) 参照)[6]。このため $X-X'$ 線上を調べると、曲率の最も大きい P 点を中心に、非線形補正が強くなると考えられる。

この見かけ上の極小は、先行研究で既に確認されており [6, 34]、これらと consistent な結果となっている。また理想的な正方格子反強磁性体に行われた中性子回折実験では、外部磁場によって P 点の励起エネルギーが X' 点と比べて小さくなることを報告しており [9]、これらの計算結果と consistent である [6, 34]。

$X-X'$ 線上の P 点の見かけ上の極小は、先行研究 [6, 34] で既に確認されている。一方で、 M 点付近のエネルギー極小の報告は調べる限り見つからない。この M 点付近の様子が見落とされた大きな理由は、ロトンの存在する磁場領域が非常に狭いためだと考えている。

3.2.3 スピンの大きさ S と励起スペクトル

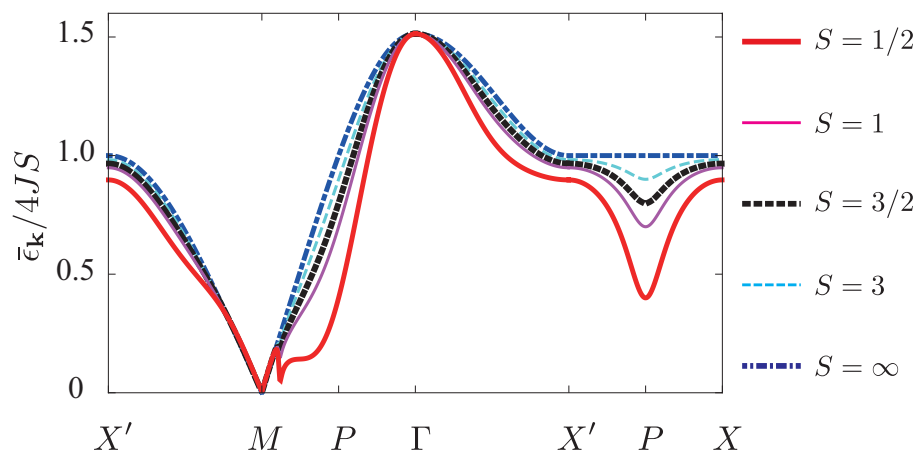


図 3.4 スピンの大きさが $S = 1/2$ から $S = \infty$ について非線形励起スペクトル ($\hbar = 0.7568$) (参考文献 Y. Kubo and S. Kurihara, Phys. Rev. B **90**, 014421 (2014) [33] 図 3 より、引用)。スピンの大きさ S が大きいほど線形スピン波スペクトルに近づくが、定性的には同じものが得られる。この S の変化に対する応答は、 $\Gamma-M$ 線上や P 点付近では確認できるが、他の点では殆ど重なってしまう。ここからも、非線形補正が $\Gamma-M$ 線上を中心に強くなっていることがわかる。

スピンの大きさ $S = 1/2$ から $S = \infty$ (線形スピン波) の $\bar{\epsilon}_{\mathbf{k}}(\hbar = 0.7568)$ を示す。これより、スピンの大きさ S が変わってもスペクトルに本質的な違いは生じないことがわかる。ただし S の増大につれ、マグノン間相互作用は小さくなるため、非線形効果は小さくなる。したがって、その励起スペクトルは線形スピン波スペクトルに近づく。また $\Gamma-M$ 線上や、 $X-X'$ 線上の P 点は S の変化に対するスペクトルの変化が確認できるが、他の線上では殆ど重なっている。ここからも、非線形補正が曲率の大きい $\Gamma-M$ 線上を中心に強くなっていることがわかる。

3.3 “ロトン”の磁場変化の詳細

本節では、マグノンの音響モードに生じるロトンについてその出現する波数、エネルギーギャップや有効質量について詳細に調べる [33]。これらの計算結果から、

- ロトンは M 点付近で3 マグノン相互作用が非常に強くなることによって生じること
- この強い3 マグノン相互作用によって cant した基底状態は不安定化し、量子相転移の前駆現象としてロトンをソフト化させること
- Γ - M 線に垂直な方向に非常に鋭い構造を形成すること

がわかる。この新しい基底状態の詳細について、本研究の現段階ではっきりしたことを述べることはできないが、強い3 マグノン相互作用が量子相転移を引き起こすと考えている。また、ロトンは磁場に非常に敏感に応答するため、ソフト化の過程で物性を連続的に大きく変化させる点でも大変興味深い。さらに、ロトン波数付近における鋭い構造の出現は、高磁場下の正方格子反強磁性体における中性子散乱実験 [10] や、量子モンテカルロ法 [35] や厳密対角化 [34] による数値計算などで指摘された線幅増大の大きな要因の一つであると考えている。この点については、3.3.4 節で詳しく述べる。

3.3.1 “ロトン”と外部磁場

本小節では、高磁場下で生じた $S = 1/2$, 1 のロトンの詳細を議論する [33]。まずロトンの波数 $\mathbf{k}_{\text{rot}}$ 、エネルギーギャップ Δ_{rot} 、 Γ - M 線に平行、垂直方向の有効質量 $m_{\parallel}^*$, $m_{\perp}^*$ の計算結果を、図 3.5 に示す。

図 3.5(a) に、ロトンの波数 $\mathbf{k}_{\text{rot}}$ を特徴づける η (Γ - M 線上にあることから $\mathbf{k}_{\text{rot}} = \pi(1 - \eta, 1 - \eta)$) の h 依存性を示す。 $S = 1/2$, $S = 1$ とともに崩壊領域の限界点の波数 $\mathbf{k}_{\text{th}}$ 付近でロトンが生じていることがわかる。これは初期状態と中間状態のエネルギー差が無限小の過程が、この限界点付近に無数に存在するため、式 (2.25) より 1 マグノンと 2 マグノンの混合が特に強くなるためである。

図 3.5(a)(c)(d) より、 Δ_{rot} , $m_{\perp}^*$, $m_{\parallel}^*$ が磁場増大につれて急峻にゼロに向かうことがわかる。また Δ_{rot} から、ロトンギャップは僅かな磁場の変化 ($\Delta h \approx 0.001$ 程度) について、 J のオーダーで変化していることがわかる。このように、ロトンが磁場に非常に敏感に応答することは極めて稀なことであり、興味深い。このロトンの詳細 (Δ_{rot} , $m_{\perp}^*$, $m_{\parallel}^*$) については、後述の解析的な近似法によって明らかにする。

図 3.5 から、 $S = 1/2$ に限り“浅いロトン”が出現していることがわかる。この浅いロトンの Δ_{rot} と $m_{\perp}^*$ は、 h の変化に対して単調に、 $\mathbf{k}_{\text{rot}}$ と $m_{\parallel}^*$ は、非単調に振る舞う。前者は、 h の増大につれて非線形相互作用が単調に増加することによって生じる。一方で後者は、spectral weight の大きさと初期状態と中間状態のエネルギー差によって決まる。ここで Γ 点付近ではその spectral weight が大きい一方、 M 点付近では初期状態と中間状態のエネルギー差が小さい。式 (2.25) に示されるように、3 マグノン相互作用は spectral weight が大きい程、また状態間のエネルギー差が小さいほど大きくなる。したがって、 M 点側と Γ 点側の間に競合が生じ、非単調な振る舞いが観測できる。[図 3.3(a) に示したロトンは、浅いロトンである。] また、この他にも $h \approx 0.5$ 付近で Γ 点付近 (Γ - M 線上) に浅いロトンが生じる。しかし、これらの浅いロトンは実際の実験で

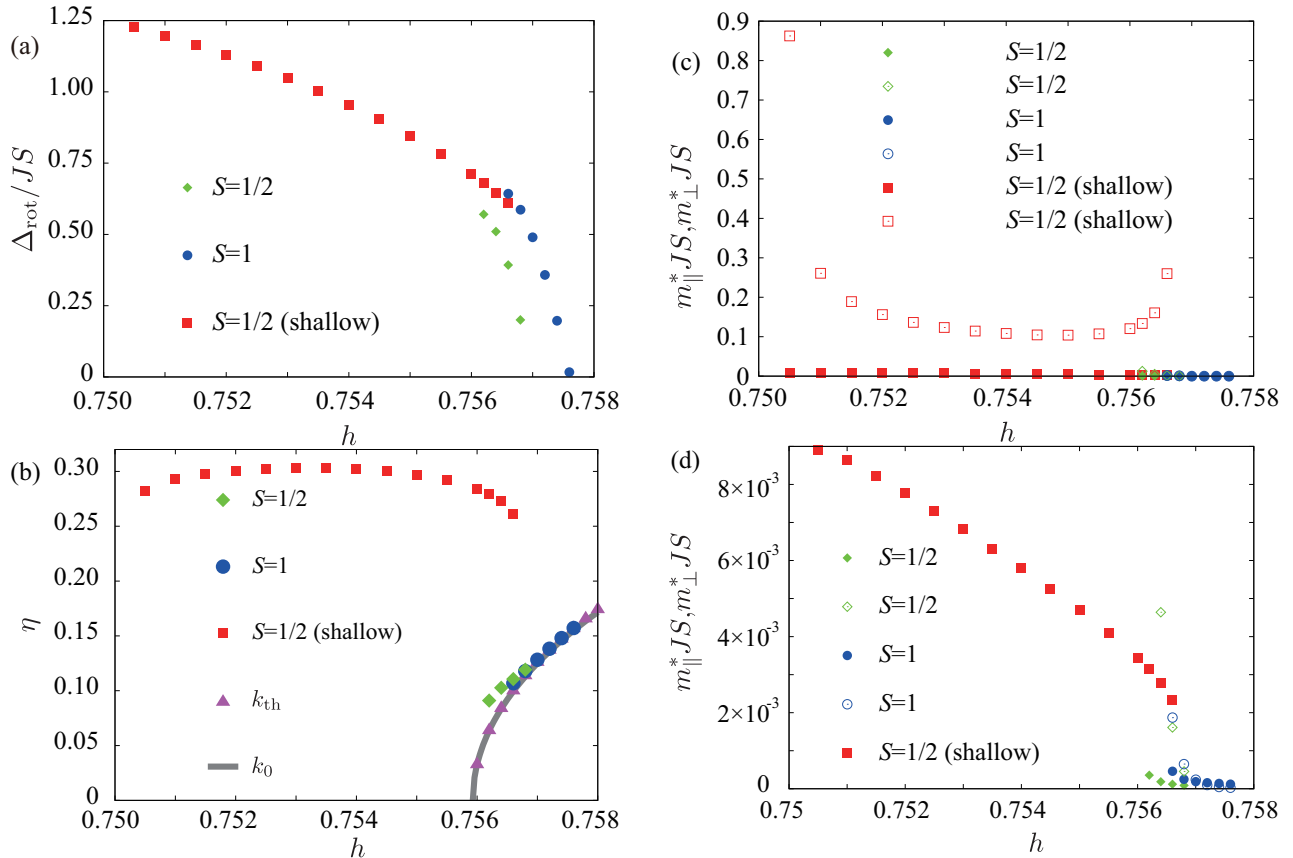


図 3.5 (a) ロトンギャップ Δ_{rot} の h 依存性 (参考文献 Y. Kubo and S. Kurihara, Phys. Rev. B **90**, 014421 (2014) [33] 図 4 より、引用)。ダイヤ型は $S = 1/2$ 、丸は $S = 1$ 、四角は $S = 1/2$ のみに出現する浅いロトンをプロットしたものである。ロトンギャップ Δ_{rot} は磁場増大につれて単調に減少し、ゼロに向かうことがわかる。(b) ロトン波数 $\mathbf{k}_{\text{rot}}$ の h 依存性 (参考文献 Y. Kubo and S. Kurihara, Phys. Rev. B **90**, 014421 (2014) [33] 図 4 より、引用)。ここでは Γ - M 線上のロトン波数 $\mathbf{k}_{\text{rot}} = \pi(1 - \eta, 1 - \eta)$ を特徴づける η を示す。ここで、 $S = 1/2$ 、 $S = 1$ のロトンは崩壊の限界点 ($\mathbf{k}_{\text{th}}$) 付近に出現することがわかる。またこの $\mathbf{k}_{\text{th}}$ と $\mathbf{k}_0$ [本文中にその定義を導出] は良い一致を示す。(c) ロトン質量 $m_{\parallel}^*$ 、 $m_{\perp}^*$ の h 依存性 (参考文献 Y. Kubo and S. Kurihara, Phys. Rev. B **90**, 014421 (2014) [33] 図 4 より、引用)。ここで塗りつぶした点は $m_{\perp}^*$ 、中抜き点は $m_{\parallel}^*$ を示す。浅いロトンの $m_{\parallel}^*$ は、磁場増大につれて非単調に振る舞う。他のロトン質量 $m_{\parallel}^*$ 、 $m_{\perp}^*$ は、非常に小さい。(d) ロトン質量 $m_{\parallel}^*$ 、 $m_{\perp}^*$ の h 依存性の詳細 (参考文献 Y. Kubo and S. Kurihara, Phys. Rev. B **90**, 014421 (2014) [33] 図 4 より、引用)。ロトン質量 $m_{\parallel}^*$ 、 $m_{\perp}^*$ が単調にかつ急峻にゼロに向かうことがわかる。また、浅いロトンの $m_{\perp}^*$ も、単調に減少する。

は有限の面間相互作用や温度の効果によって消えてしまう可能性が高い。そのため、ここからは $S = 1/2$ 、1 のロトンの焦点を当ててその詳細を調べる。

3.3.2 ロトン波数の近似値

この磁場領域における Γ - M 線上に交わる崩壊領域の限界点の波数 $\mathbf{k}_{\text{th}}$ を、 M 点付近の励起スペクトルの 5 次までの波数展開によって近似した値 $\mathbf{k}_0$ を以下のように求める [33]。

$h \approx 0.75$ で 1 マグノン状態から 2 マグノン状態への崩壊の限界点は下式

$$\omega_{\mathbf{Q}-\mathbf{k}} - 2\omega_{\mathbf{Q}-\mathbf{k}/2} = 0, \quad (3.18)$$

によって求まる [6]。

ここで、 Γ - M 線上の線形スピン波スペクトルを波数 $k = |\mathbf{k}|$ の5次まで展開

$$\omega_{\mathbf{Q}-\mathbf{k}} \approx ck(1 + \alpha k^2 + \beta k^4), \quad (3.19)$$

する。ここで

$$\begin{aligned} c &= 2JS\sqrt{2} \cos \theta, \\ \alpha &= \frac{1}{12 \cos \theta} \left[\left(\frac{h}{h^*} \right)^2 - 1 \right], \\ \beta &= \frac{h^4 - 32h^2 + 16}{15360 \cos^2 \theta}, \end{aligned} \quad (3.20)$$

となる。線形スピン波スペクトルの、 M 点付近における5次までの波数展開 [式 (3.20)] を、崩壊の限界点を決める式 (3.18) に代入すると、

$$\omega_{\mathbf{Q}-\mathbf{k}} - 2\omega_{\mathbf{Q}-\mathbf{k}/2} \approx \frac{3}{4}k^3c \left(\alpha + \frac{5}{4}\beta k^2 \right), \quad (3.21)$$

となる。ここで、式 (3.21) の右辺をゼロと近似すると、以下のように

$$k_0 = \sqrt{\frac{-4\alpha}{5\beta}} \propto \left[\left(\frac{h}{h^*} \right)^2 - 1 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (h^* \leq h \leq 1), \quad (3.22)$$

k_0 が求まる。この近似は、 k_0 が十分小さい範囲で $\mathbf{k}_{\text{th}}$ の良い近似になっている。実際に図 3.5 よりロトンが生じる磁場領域では k_0 が十分小さいため、 $\mathbf{k}_0$ と $\mathbf{k}_{\text{th}}$ は良い一致を示す。

3.3.3 ロトンのエネルギーギャップと質量

本小節では、ロトン波数 $\mathbf{k}_{\text{rot}}$ の近似値 $\mathbf{k}_0$ を用いて、 Δ_{rot} 、 $m_{\perp}^*$ 、 $m_{\parallel}^*$ の磁場依存性を調べる [33]。

まず、式 (2.25) の行列要素を以下の方針

$$\begin{aligned} \frac{A_{\mathbf{Q}-\mathbf{k}} + B_{\mathbf{Q}-\mathbf{k}}}{\omega_{\mathbf{Q}-\mathbf{k}}} &= \left(\frac{A_{\mathbf{Q}-\mathbf{k}} - B_{\mathbf{Q}-\mathbf{k}}}{\omega_{\mathbf{Q}-\mathbf{k}}} \right)^{-1} = \sqrt{\frac{1 - \gamma_{\mathbf{k}}}{1 + \cos 2\theta \gamma_{\mathbf{k}}}} \approx \frac{k}{2\sqrt{2} \cos \theta}, \\ \gamma_{\mathbf{Q}-\mathbf{k}} &\approx -1, \end{aligned} \quad (3.23)$$

によって近似する [$\mathbf{k}$ が十分小さい領域で良い近似になる]。この操作により、行列要素は

$$\begin{aligned} \frac{2NS |\Phi_1(\mathbf{Q}-\mathbf{k}, \mathbf{Q}-\mathbf{q}, \mathbf{Q}-\mathbf{p})|^2}{(H \cos \theta)^2} &\approx \frac{9}{4} \frac{kqp}{(2\sqrt{2} \cos \theta)^3} + \frac{3}{2} \frac{p+q-k}{2\sqrt{2} \cos \theta} \\ &\quad + \frac{2\sqrt{2} \cos \theta}{4} \left(\frac{p}{kq} + \frac{k}{pq} + \frac{q}{kp} + \frac{2}{k} - \frac{2}{q} - \frac{2}{p} \right) \\ &\approx \frac{9}{4} \frac{kqp}{(2\sqrt{2} \cos \theta)^3}, \end{aligned} \quad (3.24)$$

となる。

崩壊の限界点の波数の近似値 $\mathbf{k}_0$ が式 (3.18) で決まることから、 $\mathbf{k}_{\text{rot}}$ 付近で強い非線形補正を生じさせる次の図 3.6 の self-energy に注目する。(図 3.6 に示される過程は $\mathbf{q} \rightarrow 0$ で無限小のエネルギーで中間状態に遷移することができるため、式 (2.25) から強い補正を生むと考えられる。)

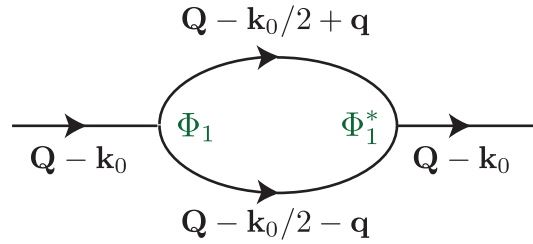


図 3.6 特に強い非線形補正を生む Self-Energy(参考文献 Y. Kubo and S. Kurihara, Phys. Rev. B **90**, 014421 (2014) [33] 図 5 より、引用)

励起スペクトルの非線形補正、 $\Sigma^{(1)}(\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \omega_{\mathbf{Q}-\mathbf{k}_0})$ に式 (3.24) に示す近似を用いて、ロトンの詳細を調べる。簡単のため $\Sigma^{(1)}(\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \omega_{\mathbf{Q}-\mathbf{k}_0})$ の分母、分子 (行列要素) を以下のように書く。

$$\begin{aligned}\Sigma^{(1)}(\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \omega_{\mathbf{Q}-\mathbf{k}_0}) &\approx \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{p}} \frac{|\Phi_1(\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{Q} - \mathbf{k}_0/2 + \mathbf{q}, \mathbf{Q} - \mathbf{k}_0/2 - \mathbf{q})|^2}{\epsilon_{\mathbf{k}} - \epsilon_{\mathbf{Q}-\mathbf{k}_0/2+\mathbf{q}} - \epsilon_{\mathbf{Q}-\mathbf{k}_0/2-\mathbf{q}}} \\ &= \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{p}} \frac{|\Phi_1(\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{q})|^2}{W[\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{q}]}.\end{aligned}\quad (3.25)$$

ここで式 (3.24) より、式 (3.25) の分子の長波長極限 $|\Phi_1(\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{q})|_{\mathbf{q} \rightarrow 0}^2$ は、

$$\frac{2NS |\Phi_1(\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{q})|_{\mathbf{q} \rightarrow 0}^2}{(H \cos \theta)^2} \approx \frac{9}{16} \frac{k_0^3}{(2\sqrt{2} \cos \theta)^3}, \quad (3.26)$$

となる。したがって

$$|\Phi_1(\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{q})|_{\mathbf{q} \rightarrow 0}^2 \approx J^2 S (\sin 2\theta)^2 \frac{9k_0^3}{(2\sqrt{2} \cos \theta)^3}, \quad (3.27)$$

となる。

次に式 (3.25) の分母、 $W[\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{q}]$ について考える。式 (3.5) と同様にして、 $|\mathbf{k}/2 + \mathbf{q}|$ を近似すると

$$|\mathbf{k}/2 + \mathbf{q}| = k/2 + q - \frac{1}{4} \frac{kq}{(k/2 + q)^2} \phi^2, \quad (3.28)$$

となる [6, 16]。ここで、 ϕ は方位角を指す。したがって、式 (3.28) と式 (3.20) によって $W[\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{q}]$ は

$$\begin{aligned}W[\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{q}] &\approx c(k_0 - |\mathbf{k}_0/2 + \mathbf{q}| - |\mathbf{k}_0/2 - \mathbf{q}| \\ &\quad + \alpha[k_0^3 - (k_0/2 + q)^3 - (k_0/2 - q)^3]) \\ &\approx -\frac{ck_0}{2} \frac{q^2}{(k_0/2)^2 - q^2} [\phi^2 - 6\alpha \frac{((k_0/2)^2 - q^2)^2}{q^2}] \\ &\approx -\frac{ck_0}{2} \frac{q^2}{(k_0/2)^2 - q^2} [\phi^2 - \phi_0^2],\end{aligned}$$

ここで

$$\phi_0 = \sqrt{6\alpha} \frac{(k_0/2)^2 - q^2}{q}, \quad (3.29)$$

となる。

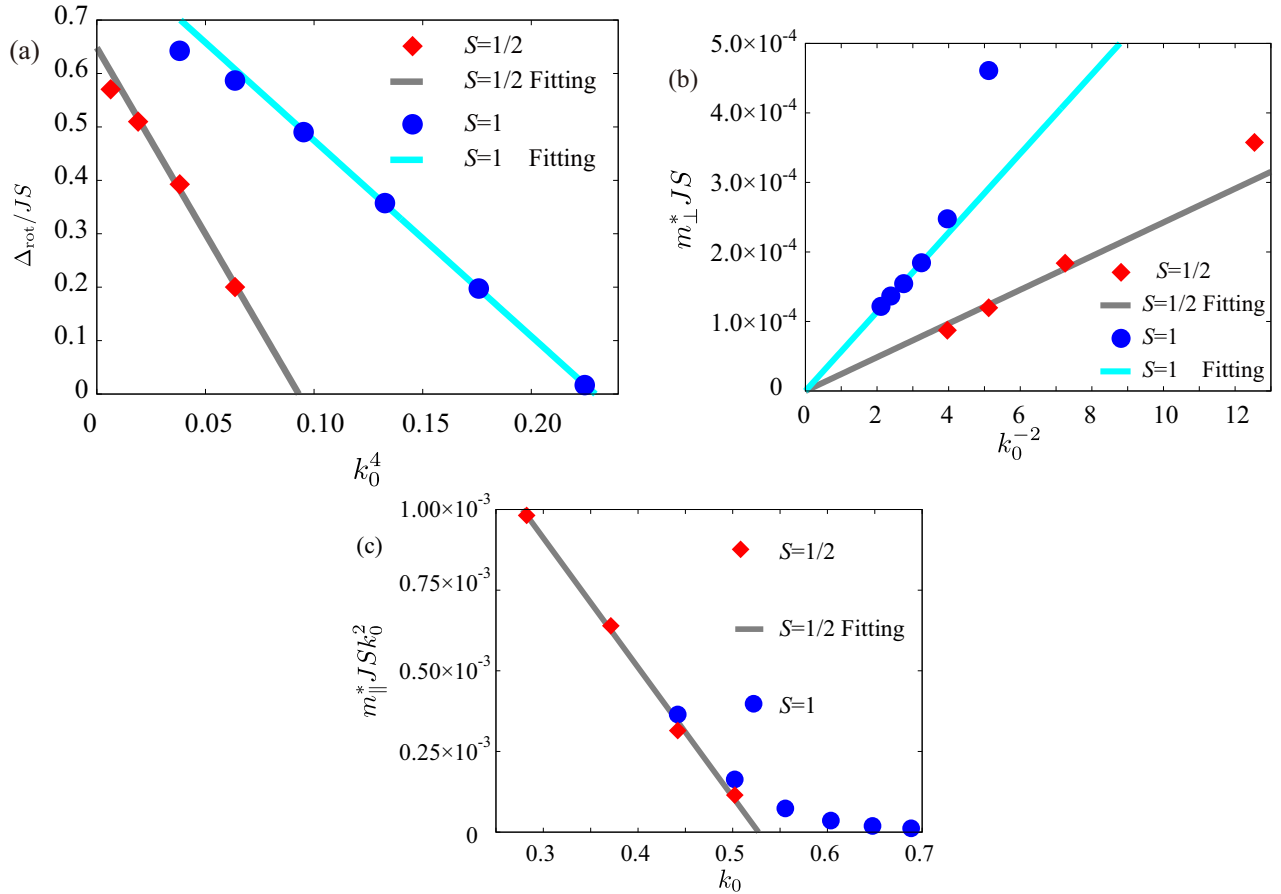


図 3.7 (a) ロトンギャップ Δ_{rot} の k_0^4 依存性を示す (参考文献 Y. Kubo and S. Kurihara, Phys. Rev. B **90**, 014421 (2014) [33] 図 6 より、引用)。プロットは $S = 1/2$ (ダイヤモンド型)、 $S = 1$ (丸) のデータ、線はフィッティングを示した。この k_0 依存性は $1/S$ 補正によって生じるため、 $S = 1/2$ の Δ_{rot} は $S = 1$ の約 2 倍の速さでソフト化している。(b) ロトン質量 $m_{\perp}^*$ の k_0^2 依存性を示す (参考文献 Y. Kubo and S. Kurihara, Phys. Rev. B **90**, 014421 (2014) [33] 図 6 より、引用)。(c) ロトン質量 $m_{\parallel}^* k_0^2$ の k_0 依存性を示す (参考文献 Y. Kubo and S. Kurihara, Phys. Rev. B **90**, 014421 (2014) [33] 図 6 より、引用)。これらの結果から、近似によって導いた磁場依存性が良い近似になっていることがわかる。

以上より、式 (3.26) と式 (3.29) から、 $\Sigma^{(1)}(\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \omega_{\mathbf{Q}-\mathbf{k}_0})$ は以下のように

$$\Sigma^{(1)}(\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \omega_{\mathbf{Q}-\mathbf{k}_0}) \propto Jk_0^4 \tan^2 \theta \int \frac{q dq}{q^2} \approx Jk_0^4 \tan^2 \theta \ln \left[\frac{\Lambda}{k_0} \right], \quad (3.30)$$

近似することができる。ここで、 Λ はカットオフ波数。これより、ロトンは 2 次元性を反映した対数因子を伴って生じていることがわかる。

以上の議論から Δ_{rot} は、

$$\Delta_{\text{rot}} \approx ck_0 + A_0 Jk_0^4 \tan^2 \theta \ln \left[\frac{\Lambda}{k_0} \right], \quad (3.31)$$

となる。ここで図 3.7 に示す限られた範囲では、対数因子は定数とみなすことができる。このため式 (3.31) から、 Δ_{rot} は k_0^4 の 1 次関数として振る舞うことがわかる。

また、 Δ_{rot} の k_0^4 依存性を図 3.7(a) に示す。この図より、 Δ_{rot} が、近似的に k_0^4 の 1 次関数になっていることがわかる。ここで磁場増大につれて k_0^4 は増大するため [式 (3.22)]、ロトン波数付近のエネルギーギャップは急峻にゼロに向かい、基底状態の組み換えを生じる。また $k_0 \rightarrow 0$ で、対数因子は発散するが、 $k_0^4 \ln \left[\frac{\Lambda}{k_0} \right]$

はゼロに収束する。このため、特異性は生じない。

以上より、本研究で Δ_{rot} の磁場依存性を詳細に調べた。その結果、ロトンの出現とそのソフト化は、3 マグノン相互作用が $h \approx 0.75$ で、ある波数付近で特に強くなる（初期状態と中間状態への遷移のエネルギーが無
限小の過程が無数に存在するため）ことによって生じる相転移の前駆現象であり、物理的に重要であることが
わかった。

次に $\Sigma^{(1)}(\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \omega_{\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0})$ を k_0 で微分することにより、 $m_{\perp}^*$ 、 $m_{\parallel}^*$ を議論する。まず、 $\Sigma^{(1)}(\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \omega_{\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0})$ を Γ - M 線に垂直に微分すると、

$$\begin{aligned} 1/m_{\perp}^* &\approx \frac{1}{2k_0} \frac{\partial \Sigma^{(1)}(\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \omega_{\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0})}{\partial k_0} \\ &= \frac{1}{2k_0} \sum_{\mathbf{q}} \left[\frac{|\Phi_1(\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{q})|}{k_0} \frac{\partial}{\partial k_0} \left(\frac{1}{W[\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{q}]} \right) \right. \\ &\quad \left. + \frac{1}{W[\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{q}]} \frac{\partial |\Phi_1(\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{q})|^2}{\partial k_0} \right], \end{aligned} \quad (3.32)$$

となり、 Γ - M 線に平行に微分すると

$$\begin{aligned} 1/m_{\parallel}^* &\approx \frac{\partial^2 \bar{\epsilon}_{\mathbf{k}_0}}{\partial k_0^2} \\ &= b_0 k_0^3 \\ &\quad + \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{q}} \left[\frac{\partial}{\partial k_0} \left(\frac{2}{W[\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{q}]} \right) \frac{\partial |\Phi_1(\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{q})|^2}{\partial k_0} \right. \\ &\quad + \frac{1}{W[\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{q}]} \frac{\partial^2 |\Phi_1(\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{q})|^2}{\partial k_0^2} \\ &\quad \left. + |\Phi_1(\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{q})|^2 \frac{\partial^2}{\partial k_0^2} \left(\frac{1}{W[\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{q}]} \right) \right], \end{aligned} \quad (3.33)$$

を得る（ここで b_0 は定数、 $\alpha \propto k_0^2$ を用いた）。

ここで、 $1/W[\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{q}]$ の微分は、

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial k_0} \left(\frac{1}{W[\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{q}]} \right) &= - \frac{1}{W[\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{q}]^2} \frac{\partial W[\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{q}]}{\partial k_0}, \\ \frac{\partial^2}{\partial k_0^2} \left(\frac{1}{W[\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{q}]} \right) &= - \frac{1}{W[\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{q}]^2} \frac{\partial^2 W[\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{q}]}{\partial k_0^2} \\ &\quad + \frac{2}{W[\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{q}]^3} \left(\frac{\partial W[\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{q}]}{\partial k_0} \right)^2, \end{aligned} \quad (3.34)$$

となる。さらに、 $W[\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \mathbf{q}]$ の1回、2回微分は、

$$\begin{aligned} \frac{\partial w[\tilde{\mathbf{k}}_0, \mathbf{q}]}{\partial k_0} &\approx \frac{2cq^2}{k_0^2} (\phi^2 + 3\phi_0^2), \\ \frac{\partial^2 w[\tilde{\mathbf{k}}_0, \mathbf{q}]}{\partial k_0^2} &\approx - \frac{4cq^2}{k_0^3} (\phi^2 - 3\phi_0^2), \end{aligned} \quad (3.35)$$

である。

式 (3.33)、式 (3.34)、式 (3.35) から $m_{\perp}^*$ 、 $m_{\parallel}^*$ は

$$m_{\perp} \propto k_0^{-2}, \quad (3.36)$$

$$m_{\parallel} \propto k_0^{-2} (1 - d_0 k_0), \quad (3.37)$$

と近似できることが分かる。 $(d_0$ は定数。)

ロトン質量 $m_{\perp}^*$ の k_0^{-2} 依存性を図 3.7(b) に、 $m_{\parallel}^* k_0^2$ の k_0 依存性を図 3.7(c) に示す。これらのグラフから、式 (3.36)、(3.37) によって $m_{\perp}^*$ 、 $m_{\parallel}^*$ が良い近似になっていることがわかる。また式 (3.37) は、 k_0 が十分に小さいときにより近似になっており、 k_0 の小さい領域で良い一致を示していることもわかる。

3.3.4 ロトンの持つ鋭い構造

本小節では、ロトン波数 $\mathbf{k}_{\text{rot}}$ 付近の Γ - M 線に垂直方向に出現する鋭い構造 [図 3.3(e)] について議論する [33]。

励起スペクトルの非線形補正の分母 $W[\tilde{\mathbf{k}}_0, \mathbf{q}]$ は

$$W[\tilde{\mathbf{k}}_0, \mathbf{q}] \approx -\frac{cqk_0^2}{2} \frac{\phi^2 - \phi_0^2}{\phi_0}, \quad (3.38)$$

と書ける。したがって、非線形補正の角度積分は

$$\begin{aligned} \int d\phi \frac{1}{W[\tilde{\mathbf{k}}_0, \mathbf{q}]} &\approx -\frac{1}{cqk_0^2} \int d\phi \left(\frac{1}{\phi - \phi_0} - \frac{1}{\phi + \phi_0} \right) \\ &\propto \ln[|\phi/\phi_0 - 1| + \delta], \end{aligned} \quad (3.39)$$

と近似できる。ここで、 δ はカットオフであり、

$$\delta \propto k_{\text{rot}}/k_{\text{th}} - 1 \quad (3.40)$$

である。 $|\phi - \phi_0|$ は、 Γ - M 線に垂直な線上で変化するため、対数因子を伴った異常が観測される。このため図 3.3(e) に示される、非常に鋭い構造が生じる。

先行研究では、実験 [10] や数値計算 [34, 35] により、高磁場下で線幅 ΔE が非常に増大することが指摘されている。この線幅増大は、高磁場下のマグノンの崩壊が原因であると考えられている。すなわち、self-energy の虚部が大きな線幅 ΔE_1 を与えていると解釈している。

$$\Delta E_1 \sim \text{Im}[\Sigma^{(1)}(\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \omega_{\mathbf{Q}-\mathbf{k}_0})]. \quad (3.41)$$

しかし式 (3.39) が示すような鋭い構造から、self-energy の実部に基づく新たな解釈が可能である。

実験や数値計算の波数空間の解像度 Δk に依存し、self-energy の実部の構造に基づく線幅 ΔE_2 が発生すると考えられる。

$$\Delta E_2 \sim \frac{\partial \text{Re}[\Sigma^{(1)}(\mathbf{Q} - \mathbf{k}_0, \omega_{\mathbf{Q}-\mathbf{k}_0})]}{\partial k} \Delta k. \quad (3.42)$$

ΔE_2 は波数空間の分解能を向上することで抑制することが可能である。この意味で ΔE_2 は、「みかけ上」の線幅といえる。

したがって実際に観測される線幅 ΔE は、

$$\Delta E = \Delta E_1 + \Delta E_2 \quad (3.43)$$

となる。一般に、self-energy の実部の構造に対して実験や数値計算の波数空間の解像度は十分であるため、 $\Delta E_1 \gg \Delta E_2$ である。しかし式 (3.39) が示すような鋭い構造がある場合、 $\Delta E_1 \lesssim \Delta E_2$ 又は $\Delta E_1 \ll \Delta E_2$ となる可能性がある。

先行研究 [10, 34, 35] で指摘されている広がった線幅は、対数因子を伴った鋭い構造による「みかけ上」の線幅が大部分を占める可能性がある。この場合は実験や数値計算が一見示唆する程、崩壊効果は大きくないことになる。これは、先行研究の解釈を大きく変える可能性があることを強調しておきたい。

3.4 量子相転移とロトンの実験的観測

前章までの議論より、ロトンの出現とそのソフト化が、わずかな磁場の変化によってその物性が敏感に変化する量子相転移の前駆現象と考えられることや、波数空間に非常に鋭い構造を持つことを示した。本節では、2次摂動範囲内の計算結果と先行研究から、新しい基底状態の予測をする。さらに、ロトンの実験的な観測の可能性について議論する [33]。

3.4.1 新しい基底状態

ここまでの議論により、 $h \approx 0.75$ でロトンが出現することが明らかになった。さらにロトンのソフト化により cant した状態が不安定化し、新しい基底状態へと遷移すると考えている。ではその新しい基底状態とは、どのような状態なのであろうか。本節ではこの高磁場側で安定化する新しい基底状態について、ここまでの議論と先行研究から予測を行う [33]。

ゼロ磁場から飽和磁場までのスピン波速度、磁化、spin stiffness、dynamical structure factor などの物理量の磁場依存性が、厳密対角化・量子モンテカルロ・線形スピン波計算などで既に計算されている [32, 34, 36]。静的物理量に関して、前述の幾つかの計算方法による結果は互いに良い一致を示し、あらゆる磁場において目立った異常はみられなかった [32, 34, 36]。一方、厳密対角化・量子モンテカルロ法による動的構造因子 (dynamical structure factor) の計算結果は、 $h \approx 0.75$ を境に低磁場側と高磁場側で励起スペクトルの質的变化を示唆する計算結果を得ている [34, 35]。このように低磁場側と高磁場側では、静的物理量に顕著な変化が確認されない一方、動的構造因子には質的变化が確認されている。

まず cant した基底状態は、交換相互作用と Zeeman エネルギーを最小化するように選ばれ [式 (2.9)]、マグノン間相互作用のない古典極限では正しいと考えられる。しかし S が有限の場合、磁場が誘起した noncollinear な構造によって 3 マグノン相互作用が有限になる。3 マグノン相互作用の強さは磁場に依存し、 $h \approx 0.75$ ではある波数付近で非常に強くなる。この強い相互作用によって、ロトンが出現し、磁場増大につれてソフト化する。

以上の議論から、先行研究と本研究を比較して以下のようにまとめることができる。

先行研究: 相転移すると考えられる $h \approx 0.75$ の磁場領域では、静的物理量には異常は見られない。一方で dynamical structure factor は、励起スペクトルに質的变化を生じることが示唆されること [34, 35]。

本研究: 外部磁場印加によって、交換相互作用と Zeeman エネルギーを最小化するために cant 構造が生じる。しかしその noncollinear 構造は、3 マグノン相互作用を誘起し、 $h \approx 0.75$ で特に M 点付近で非常に強くなる。これによってロトンが出現してソフト化し、単純な cant 構造が不安定化して新しい基底状態へと相転移が起きると考えられること。

これらの研究から高磁場下に出現する新しい基底状態は、低磁場下で安定化した cant した状態 [図 (2.1)] と類似の状態であると考えている。なぜなら、相転移によってスピンの揺らぎの様子を大きく変化させる場合、磁化曲線など様々な静的物理量に強い異常をもたらす可能性が高いためである。したがって、交換相互作用・Zeeman エネルギーに加えて3 マグノン相互作用を最小化するため、高磁場側でロトンモードが凍結するものであると考えている。この新しい基底状態は、相転移時のロトンの波数 (強い3 マグノン相互作用を生じる波数付近) によって特徴づけられた、 $S_i^{x_0}-S_i^{y_0}$ 面内で θ を保存する noncoplanar [全てのスピンの同じ平面内に存在しない] な変調を受けた状態だと考えている。また、この新しい相は先行研究のスピン流秩序と類似のものである可能性もある [37]。

3.4.2 ロトンの実験的観測

本節では、この敏感に応答する励起スペクトルの実験的観測の可能性について考えていきたい [33]。

まず計算結果より、適切な条件下で中性子回折実験で Γ - M 線上の励起スペクトルを調べると、ロトンを観測できる可能性があると考えられる。またヘリウムのロトンギャップが圧力変化によって変化し、その比熱が変化するように [38] ロトンの磁場変化に対する敏感な応答が、比熱によって観測できる可能性がある。

ここでは、ロトンの観測に必要な実験条件

1. 飽和磁場の 75% 程度の磁場が発生可能であり、飽和磁場の 1% 以下の一様性が確保できること。
2. 面間相互作用や磁気異方性の少ない理想的な $S = 1/2$ 、1 程度の正方格子 Heisenberg 反強磁性体であり、飽和磁場が 10T 程度であること。

に焦点をあて、その可能性について議論する。

1. 本研究で示したロトンは飽和磁場の 1 % 以下の磁場変化に対して敏感に応答することがわかっている。したがって、この測定には、 $h \approx 0.75$ で 0.1% 程度の一様性が保たれた外部磁場を発生させることが必要である。ここで一様な磁場を発生させることは、サンプルの大きさが大きい程難しくなる。比熱の測定には、中性子散乱と比べてより小さいサンプルでの実験が可能である。したがって比熱によるロトンの観測は、より現実的である。また超伝導マグネットによる測定などの普及により、10T 程度の一様な磁場の発生が可能になってきている。ここで、磁場の一様性や発生させるべき磁場を決めるパラメータは飽和磁場 ($8JS$) であるため、飽和磁場が 10T 程度であればこの測定は実現の可能性はある。
2. 近年、面間相互作用が小さく磁気異方性の小さい 2 次元正方格子反強磁性体が合成されている。これらの中には交換相互作用 J が十分に小さく飽和磁場が 10T 程度の pyrazine と呼ばれる有機系物質を含む物質群がある [9,13,14]。これらの物質は、pyrazine 分子が大きいいため面間相互作用が小さい [14]。さらに、 $S = 1/2$ かつ磁気異方性も小さいため、実験に理想的な物質群と考えられる。ここで、有機物質系は大きな単結晶を得ることが難しいために中性子散乱実験が一般には難しいが、これらの物質群の中には P 点と X' 点で磁場中 [飽和磁場 45T 程度の物質で 14.9T まで測定。物質名 $\text{Cu}(\text{pz})_2(\text{ClO}_4)_2$ (pz は pyrazine の略称)] で中性子散乱実験が行われた例もある [9]。無機物質においても pyrazine のように理想的な物質群が得られれば、より大きな単結晶による実験的観測の可能性が高まると考えて

いる。

ロトンの中性子散乱実験による観測には $S = 1/2, 1$ 程度が適していると考えている。これは、このロトンの出現や基底状態の組み換えには S が大きいほど強い磁場が必要であるためである。ここで図 3.5(c)(d)、3.7(b)(c) より、高磁場下ほど有効質量は小さくなり、その大きさは非常に小さくなる。したがってロトンを観測するためには、狭い波数空間に出現する異常を観測できる実験精度が必要である(さもないと「見かけ上」の線幅が増大する ΔE_2)。さらに、強磁場下では self-energy の虚部 (ΔE_1) も大きくなるため [6]、ロトン波数付近のスペクトルはぼやけてしまう可能性が高く [10]、ロトンを直接観測するのは困難だと考えられる。以上より中性子散乱実験には、 $S = 1/2, 1$ 程度のスピンを持つ物質を用いることが望ましい。

一方、ロトンを比熱によって観測する場合(超流動ヘリウム [38] と同様に、指数関数的 $\propto e^{-\Delta_{\text{rot}}/T}$ [温度 T] な磁気比熱が期待される)には、波数空間の制御性は問題にならない。したがって、 $S > 1$ の系も実験観測に適する。

このように、ロトンを観測するためには精密な測定を必要とするが、1. 実験技術の発展や、2. 適切な物質が合成されていることから、実験的な観測も期待できると考えている。

また中性子散乱に関して、 $X-X'$ 線上の P 点で出現する見かけ上の極小に関しても観測が期待できる。実際に磁場増大につれて前述の $\text{Cu}(\text{pz})_2(\text{ClO}_4)_2$ の中性子散乱実験により、 X' 点に対して P 点の励起エネルギーが低くなる様子が実験によって確認されている [9]。この P 点磁場変化に対する応答は、ロトン波数付近と比べて緩やかであることから、測定が比較的容易である[飽和磁場の 1% の変化に対して、励起スペクトルは大きく変化しない。したがって、磁場の一様性の要求が緩くてよい。]。

3.5 非線形スペクトル・まとめ

本章では、高磁場下の物性がはっきりとはわかっていなかった、正方格子反強磁性体の励起スペクトルを調べた [33]。その結果 $\bar{\epsilon}_{\mathbf{k}}$ が、 $h \approx 0.75$ で M 点付近にロトンが生じ、僅かな磁場変化に敏感に応答することがわかった。この詳細を調べたところ、ロトンの出現とそのソフト化が相転移の前駆現象として物理的に重要であることが判明した。

高対称軸上での非線形スピンスペクトル $\bar{\epsilon}_{\mathbf{k}}$ を調べたところ、最も非線形補正の強い Γ - M 線上では $h \approx 0.75$ で M 点付近に極小(ロトン)を生じることがわかった。このエネルギーの極小は、Brillouin ゾーン全体から見ても極小になっており、磁場変化に極めて敏感に応答することがわかった。これは、最も曲率の大きい Γ - M 線上を中心にして非線形効果が強くなっていることによる。

また X - X' 線上の $\bar{\epsilon}_{\mathbf{k}}$ の計算から、 P 点が見かけ上の極小となる、先行研究の実験や理論と consistent な結果を得た [6, 9, 34]。この見かけの極小は Γ - M 線と交わる P 点付近の曲率が、 X - X' 線上で特に大きくなっていることにより、3 マグノン相互作用が他の点と比べて特に強いために生じたと考えている。実際に線形スピン波スペクトル $\omega_{\mathbf{k}}$ と $\bar{\epsilon}_{\mathbf{k}}$ を比べると、曲率の最も大きい Γ - M 線上を中心に非線形補正が強いことも確認した。

また $S \geq 1/2$ について、 $\bar{\epsilon}_{\mathbf{k}}$ を調べた。これにより、 S が大きいほど線形スピン波スペクトルに近いスペク

トルが得られるものの、定性的変化は生じないことがわかった。

次に、高磁場下で生じたロトンについて詳細に調べた。その結果、ロトンは飽和磁場の1%未満の磁場領域に出現し、 $\mathbf{k}_{\text{rot}}$ 、 Δ_{rot} 、 $m_{\parallel}^*$ 、 $m_{\perp}^*$ は僅かな磁場変化に対して極めて敏感に応答することがわかった。さらに、ロトンは3マグノン相互作用が最も強い1マグノンから2マグノンへの崩壊の限界点の波数 $\mathbf{k}_{\text{th}}$ 付近で生じていることも明らかにした。

このロトンを更に詳細に調べたところ、 Δ_{rot} 、 $m_{\parallel}^*$ 、 $m_{\perp}^*$ は、磁場に依存して変化する k_0 の関数として近似できることが判明した。さらに、磁場増大につれて k_0 が十分に大きくなると、3マグノン相互作用は単調に増大してロトンがソフト化することがわかった。

本研究で調べたロトンの詳細から、ロトンの出現とソフト化は相転移の前駆現象であると考えている。相転移後は、ロトン波数に特徴づけられた noncoplanar 状態が出現すると考えている。

さらに、励起スペクトルがロトン波数付近で非常に鋭い構造を持つことがわかった。この鋭い構造は、実験や数値計算における波数空間の解像度が十分ではない場合には励起スペクトルの「みかけ上」の線幅増大を引き起こすと考えられる。したがって、高磁場下正方格子反強磁性体で指摘された実験 [10] や数値計算 [34, 35] で指摘された線幅の増大の原因の一部は、この鋭い構造による可能性がある。

さらに、ロトンの実験的観測の可能性について議論した。ロトンは、中性子散乱実験や比熱測定などによって観測が可能である。ただし、ロトンは $h \approx 0.75$ の下で飽和磁場の1%以下の磁場変化に敏感に応答する。したがってロトンの観測には、 $h \approx 0.75$ の下で飽和磁場の1%以下の一様磁場における、精密な測定が不可欠である。

近年、飽和磁場が10T程度の理想的な正方格子反強磁性体 [13] が合成されている。さらに超伝導マグネット等によって、10T程度の磁場を得ることも可能になってきている。したがって、実験的にロトンを観測できる可能性がある。さらに、相転移後の新しい基底状態やそれを预言する手掛かりを、実験で直接観測する可能性がある。このためロトンの実験的な測定がなされれば、興味深い結果を得られると期待している。

最後に、本研究が実験・理論両面を刺激し、正方格子反強磁性体の強磁場下の研究の発展に繋がることを期待している。

第 4 章

2 次元反強磁性体のスピン伝導度

本章では、noncollinear 構造をとる反強磁性体におけるスピン伝導度を議論する。本章の内容は、Journal of the Physical Society of Japan (JPSJ) に掲載されている [27]。

金属に電位差をかけた場合に電流が流れるのと同様に、磁性体 [ここでは反強磁性体に注目] に磁場勾配をかけた場合に流れるものを“スピン流”と呼ぶことにする。序章に述べたように、このようなスピン流の応用が期待されている。一方、これらの研究にとっての大きな問題として、スピン流の定義が未だにはっきりとしていないことが挙げられる。この問題の根本には電荷が保存量であるのに対し、スピンは保存量ではないことがある。したがって、電荷保存則から連続方程式によって電流演算子が導出されるのに対し、スピン流密度演算子は電流と全く同様にして導くことはできない。

スピン流の実態は明確ではないが、熱・スピンの輸送現象が実験的に明らかになりつつある。例えば温度勾配から磁場勾配が誘起された (及びその逆) ことが示唆される実験 [20] が発表されており、スピン流と熱流の結合によって引き起こされた現象であると考えられる。ここで金属に温度勾配をかけると電位差を生じ、電位差をかけた場合に温度勾配が生じる。この現象を Seebeck 効果と呼び、この効果から熱流と電流の結合が指摘された。これと同様に、温度勾配からスピン圧 (金属磁性体)・磁場勾配 (反強磁性体) が生じることから、スピン流と熱流の結合が示唆される。したがって間接的ではあるが、スピン流の輸送現象への寄与が示唆される。

一方、理論的には流体力学なマクロスコピックな立場から、磁性体のスピン拡散やスピン輸送が議論されている [19, 21]。これらはマクロスコピックな物理量である磁化の連続方程式から、スピン流を定義している。しかし磁化は一般には保存せず、このような非保存系の流れを定義するのは難しい [19]。そこで磁場方向の磁化が保存する反強磁性体に限定し、保存則からスピン流を定義し、輸送特性を調べる研究がなされている。

このような研究は、1 次元反強磁性体で特に盛んになされた [24, 25, 39]。2 次元反強磁性体については、数は少ないが Ising 異方性をもつ正方格子 [22, 23, 40, 41] で研究されている。これらは磁化保存則に注目し、磁化密度について連続方程式と Heisenberg 運動方程式を連立し、スピン流密度演算子を定義している。これは磁場方向の磁化の流れとして、粗視化したスピン流を定義したことに相当する [22, 23]。さらに、このスピン流密度演算子を用いてスピン伝導度を久保公式で計算し、その振動数積分から総和則の成立を示している [22, 23, 25]。電流の理論と同様に総和則が成立することから、磁化 (磁場方向) の保存則から定義したスピン流の定義 [22–25, 39] は、説得力があると考えている。しかし、これらの研究は共通して collinear 系、特にスピンの量子化軸と磁場の方向が共線上にある場合に実質的に限定している。

本研究では磁化 (磁場方向成分) が保存するが、磁場とスピンの量子化軸が共線上にない noncollinear 系についてスピン伝導度を議論する。ここで3章で議論したように、noncollinear 系では強い非線形相互作用が存在する。したがってスピン伝導度への、非線形相互作用や、磁場に極めて敏感に応答するロトンの効果は非常に興味深い。

noncollinear 系のスピン伝導を議論するためには、この系に適用できるスピン流密度演算子を定義する必要がある。本研究では、磁場方向の磁化が保存する系に着目した。先行研究 [22, 23] では、磁化 (磁場方向成分) の保存則からスピン流密度演算子を定義している。本研究では、スピンの量子化軸が共線上にない場合について、先行研究と同様にしてスピン流密度演算子を定義する。この定義を用い、線形応答理論に基づいてスピン伝導度を計算し、スピン伝導度の振動数積分に総和則が成立することを明らかにする。この総和則の成立は、見出したスピン流密度演算子の定義の正当性を意味する。

近年、スピン流を介した輸送現象に興味が集まっており、関連した実験を理論的に解釈する必要性も高まっている。磁場とスピンの量子化軸が共線上にない系の理論研究を進めることは、マグノンの非線形効果を明らかにすることに加え、スピントロニクス発展の面で重要であると考えている。

本章では磁場中の正方格子反強磁性体に焦点を当て、スピン波理論に基づいてスピン伝導を調べる。また前半部で先行研究を紹介し、後半部で磁場と量子化軸が共線上にない noncollinear 系のスピン伝導について議論する。

4.1 先行研究

この節では Ising 異方性のある正方格子反強磁性体のスピン流密度演算子の定義と、スピン伝導度の振動数積分に成立する総和則を議論する。またこの節の内容は、Sentef らの先行研究 [22, 23] に基づいている。

まず、Ising 異方性を持つ正方格子反強磁性体の磁場下の Hamiltonian $\hat{\mathcal{H}}_I$

$$\hat{\mathcal{H}}_I = J \sum_{\langle i,j \rangle} \left[\frac{S_i^+ S_j^- + S_i^- S_j^+}{2} + \Delta_z S_i^z S_j^z \right] - H \sum_i S_i^z \quad (4.1)$$

を考える [Ising 異方性の場合、 $\Delta_z \geq 1$]。異方性がある場合、十分に低磁場の下では図 4.1 のようにスピンと磁場が平行・反平行に配列する。このとき磁場方向とスピンの方向が共線上にあるため、noncollinear 系のように量子化軸の回転の操作をする必要はない。

この系では、磁化 $\mathcal{M}_I = \sum_i S_i^z / N\Omega$ は保存する [N は総スピン数、 Ω は単位格子の面積を指す]。実際に $\mathcal{M}_I$ と $\hat{\mathcal{M}}_I$ の交換関係は

$$\begin{aligned} \frac{N\Omega}{J} [\hat{\mathcal{H}}_I, \mathcal{M}_I] &= \sum_l \sum_{\langle i,j \rangle} ([S_i^x S_j^x, S_l^z] + [S_i^y S_j^y, S_l^z]) \\ &= \sum_{\langle i,j \rangle} i (-S_i^y S_j^x - S_i^x S_j^y + S_i^y S_j^x + S_i^x S_j^y) = 0, \end{aligned} \quad (4.2)$$

より、 $\hat{\mathcal{M}}_I$ は Δ_z の値に関係なく保存量である。

この磁化保存則から導出した連続方程式、と Heisenberg 運動方程式

$$\partial_t S_i^z = [H, S_i^z], \quad (4.3)$$

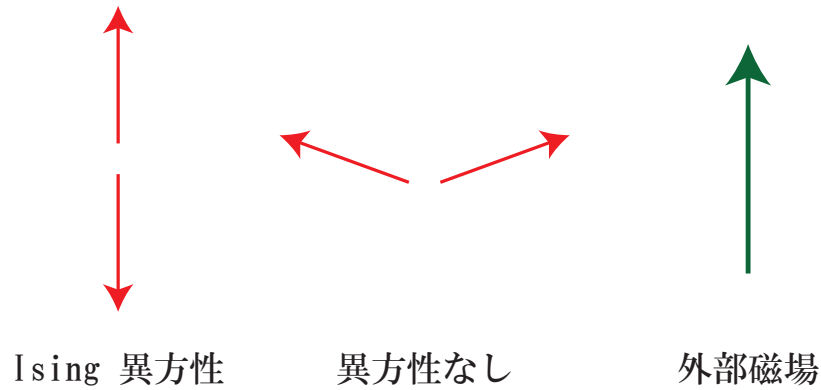


図 4.1 磁場下の正方格子反強磁性体のスピンと磁場の関係。ここで Ising 異方性がある場合、十分低磁場ではスピンと磁場が平行・反平行に配列する。

を連立させるとスピン流密度演算子 $j_{s\ i, i+\hat{x}}$ が導出され、

$$\begin{aligned} j_{s\ i, i+\hat{x}} &= \frac{Ja_0}{\Omega} (S_i^x S_{i+\hat{x}}^y - S_i^y S_{i+\hat{x}}^x) \\ &= \frac{iJa_0}{2\Omega} (S_i^+ S_{i+\hat{x}}^- - S_i^- S_{i+\hat{x}}^+), \end{aligned} \quad (4.4)$$

となる。ここで、 a_0 は格子定数である。また、あらゆる Δ_z について磁化は保存するため、異方性の大きさに関係なく同様にして導出できる。

ここで図 4.1 のように外部磁場下で $\hat{x}$ -方向 (交換相互作用のボンドの方向 $\hat{x}$ - $\hat{y}$ -のうちのの一つ) に十分緩やかな磁場勾配をかける。すると、磁場勾配の方向にスピン流 $\mathcal{J}_s(\omega)$ が磁場勾配 $\nabla_{\hat{x}} H(\omega)$ の方向に誘起される。

$$\mathcal{J}_s(\omega) = \sigma_s(\omega) \nabla_{\hat{x}} H(\omega). \quad (4.5)$$

ここで $\sigma_s(\omega)$ はスピン伝導度である。

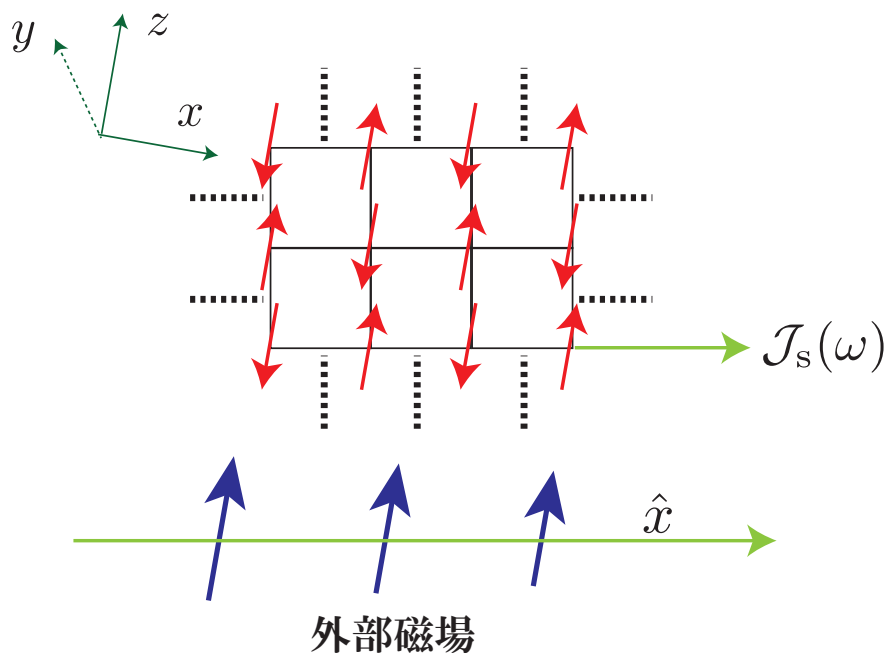


図 4.2 外部磁場の勾配を $\hat{x}$ -方向へかけると、その勾配の方向にスピン流が誘起される。

このスピン伝導度を線形応答理論で計算し、スピン伝導度の総和を導出すると

$$\int_{-\infty}^{\infty} d\omega \sigma_s(\omega) = \frac{a_0 \pi}{\Omega} \left\langle \sum_i \frac{S_i^+ S_{i+\hat{x}}^- + S_i^- S_{i+\hat{x}}^+}{2} \right\rangle, \quad (4.6)$$

となる。このような総和則は、電気伝導度についても同様な関係が成立する [23, 28–31]。したがって、電気伝導度との対応も比較的良いと言える [22, 23, 39]。このようなスピン流密度演算子やスピン伝導度の総和について、電気伝導度の場合と同様にして次の方法でも導出できる。

式 (4.1) の $\hat{\mathcal{H}}_I$ について、量子化軸を固定して以下のように i サイトについて Ψ_i のねじれを与える [39, 42, 43]。

$$\begin{aligned} S_i^+ &\rightarrow S_i^+ e^{i\Psi_i}, \\ S_i^- &\rightarrow S_i^- e^{-i\Psi_i}, \\ S_i^{z0} &\rightarrow S_i^{z0}. \end{aligned} \quad (4.7)$$

さらに、このねじれは最隣接スピン同士について一様 $[\Psi_j - \Psi_i = \Psi]$ であるとする。このとき $\hat{\mathcal{H}}_I$ は、

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_I(\Psi) &= J \sum_{\langle i,j \rangle} \left[\frac{S_i^+ S_j^- e^{i\Psi} + S_i^- S_j^+ e^{-i\Psi}}{2} + \Delta_z S_i^z S_j^z \right] - H \sum_i S_i^z \\ &\approx J \sum_{\langle i,j \rangle} \left[\frac{S_i^+ S_j^- + S_i^- S_j^+}{2} + \Delta_z S_i^z S_j^z \right] - H \sum_i S_i^z \\ &\quad + \Psi \sum_{\langle i,j \rangle} \left[\frac{iJ}{2} (S_i^+ S_j^- - S_i^- S_j^+) \right] - \frac{\Psi^2}{2} \sum_{\langle i,j \rangle} \left[\frac{J}{2} (S_i^+ S_j^- + S_i^- S_j^+) \right] \\ &= \hat{\mathcal{H}}_I + \Psi \sum_{\langle i,j \rangle} \left[\frac{iJ}{2} (S_i^+ S_j^- - S_i^- S_j^+) \right] - \frac{\Psi^2}{2} \sum_{\langle i,j \rangle} \left[\frac{J}{2} (S_i^+ S_j^- + S_i^- S_j^+) \right], \end{aligned} \quad (4.8)$$

となる。ここから Ψ の1次の係数は磁化を保存する場合に導出されるスピン密度演算子、 Ψ の2次の項はスピン伝導度の総和と関係していることがわかる [23, 39, 42, 43]。このような関係は電流についても成立するため [23, 28–31]、この導出方法についても電流と比較的良い対応がついている。

ここでスピンについて一様なねじれを与えるのに必要なエネルギーは $\frac{\rho_{s,I} \Psi^2}{2}$ であり、その係数 $\rho_{s,I}$ (spin stiffness) は、

$$\rho_{s,I} = \frac{1}{N} \frac{\partial^2 \hat{\mathcal{H}}(\Psi)}{\partial \Psi^2} \Big|_{\Psi=0} = -\frac{1}{N} \sum_{\langle i,j \rangle} \left[\frac{J}{2} (S_i^+ S_j^- + S_i^- S_j^+) \right], \quad (4.9)$$

となる [42, 43]。したがって、spin stiffness とスピン伝導度の総和は互いに関係した量であることがわかる。以上に示したスピン流密度演算子・総和則・spin stiffness について、電流とその伝導の総和についても同様の関係が指摘されているため、電流の理論との対応が比較的良い [23, 28–31]。総和則の成立や電気伝導度との良い対応は、この理論の正当性を示唆している。

磁場とスピンの量子化軸が揃っていない系の Sentef らの研究 [22, 23] に基づき、本研究ではスピンと量子化軸が共線上にない noncollinear 系にも適用可能なスピン流密度演算子を定義する。さらにスピン流の定義の正当性を、総和則の成立や、総和則と spin stiffness との関係などから示す。この結果、先行研究 [22, 23, 25, 39] と本研究 [27] のスピン流密度演算子や総和則が同様の形にまとまることがわかった。また、その詳細については後述する。

4.2 磁化の保存

本節では、磁場中の正方格子 Heisenberg 反強磁性体について、2章で述べたスピン波理論に基づいて磁化(磁場方向成分)が保存することを示す。

まず実験室系のスピン演算子の表示での磁化 $\mathcal{M} = \frac{1}{N\Omega} \sum_i S_i^{z_0}$ は、

$$\begin{aligned} \frac{N\Omega}{J} [\hat{\mathcal{H}}, \mathcal{M}] &= \sum_l \sum_{\langle i, j \rangle} ([S_i^{x_0} S_j^{x_0}, S_l^{z_0}] + [S_i^{y_0} S_j^{y_0}, S_l^{z_0}]) \\ &= \sum_{\langle i, j \rangle} i (-S_i^{y_0} S_j^{x_0} - S_i^{x_0} S_j^{y_0} + S_i^{y_0} S_j^{x_0} + S_i^{x_0} S_j^{y_0}) = 0, \end{aligned} \quad (4.10)$$

となり保存する。しかし、2章で述べたようにここに 1. 量子化軸の回転、2. Holstein-Primakoff 変換を施し、3. 摂動展開をしてスピン伝導度を計算する。このため、各変換を施し、Holstein-Primakoff 展開を n 次までで止めた場合にも、磁化が保存しているのかどうかは自明ではない [27]。したがって、1. 2. 3. それぞれについて磁化が保存することを本節では証明する。

1. 式 (2.4) を使い、式 (4.10) と同様にして導出する。まずスピン演算子の、実験室系 $S_i^\mu (\mu = x_0, y_0, z_0)$ から回転座標系 $S_i^\mu (\mu = x, y, z)$ への回転操作は、元の実験室系のスピン演算子の交換関係を保存する操作になっている。したがって、実験室系から回転座標系への変換操作をした後も、実験室系で満たされた交換関係は満たされているべきである。

実際にこの変換によって磁化 ($\mathcal{M}$) 保存則が破れないことを以下のように示す。交換関係 $[\hat{\mathcal{H}}, \mathcal{M}]$ は、

$$\begin{aligned} \frac{N\Omega}{J} [\hat{\mathcal{H}}, \mathcal{M}] &= i \sin 2\theta \sum_{\langle i, j \rangle} [\cos \theta (S_i^x S_j^y + S_i^y S_j^x)] (1 - 1) \\ &\quad + i \sin 2\theta \sum_{\langle i, j \rangle} [e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{R}_i} \sin \theta (S_i^z S_j^y - S_i^y S_j^z)] (1 - 1) \\ &= 0, \end{aligned} \quad (4.11)$$

である。したがって、1. 量子化軸の回転によって磁化保存則を破られることはない。

2. Holstein-Primakoff ボソン表示によって、磁化保存則を破らないことを示す。ボソン表示をしたスピン演算子の交換関係について考える (文献 [1] を参考にした)。式 (2.6) より、変換された演算子に関する交換関係が元のスピン演算子 $S_i^\mu (\mu = x, y, z)$ の交換を保存していることを、 $f(n_i) = (1 - n_i/2S)^{\frac{1}{2}}$ を使って示す。ここで、この証明には [1] を参考にした。

まず、 $[S_i^+, S_i^-]$ は、

$$\begin{aligned} [S_i^+, S_i^-] &= 2S[f(n_i)a_i, a_i^\dagger f(n_i)] \\ &= 2S(f(n_i)a_i a_i^\dagger f(n_i) - a_i^\dagger f(n_i)^2 a_i) \\ &= 2S \left(1 + n_i - n_i - \frac{n_i + n_i^2}{2S} - \frac{n_i - n_i^2}{2S} \right) \\ &= 2(S - n_i) = 2S_i^z, \end{aligned} \quad (4.12)$$

となる。次に、 $[S_i^+, S_i^z]$ と $[S_i^-, S_i^z]$ は、

$$[S_i^+, S_i^z] = \sqrt{2S}[f(n_i)a_i, S - n_i] = -\sqrt{2S}f(n_i)a_i = -S_i^+ \quad (4.13)$$

$$[S_i^-, S_i^z] = \sqrt{2S}[a_i^\dagger f(n_i), S - n_i] = \sqrt{2S}a_i^\dagger f(n_i) = S_i^-, \quad (4.14)$$

となる。以上に示した交換関係より、この Holstein-Primakoff 変換はもとの実験室系のスピン演算子の交換関係を保存することがわかる [1]。したがって、Holstein-Primakoff 変換をする前に満たされた磁化の保存則は、変換後にも破れることはない。

実際に、Holstein-Primakoff 変換後も磁化保存則が満たされることを示す。まず簡単のため、変換後の Hamiltonian を以下のように分割

$$\hat{\mathcal{H}} = \hat{\mathcal{H}}_a + \hat{\mathcal{H}}_b + \hat{\mathcal{H}}_c + \hat{\mathcal{H}}_d, \quad (4.15)$$

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_a &= JS \sum_{\langle i,j \rangle} \left[\sin^2 \theta a_i^\dagger f(n_i) f(n_j) a_j - \cos^2 \theta a_i^\dagger a_j^\dagger f(n_i) f(n_j) \right] + \text{H.c.}, \\ \hat{\mathcal{H}}_b &= -JS \sum_{\langle i,j \rangle} \cos 2\theta \left[S^2 - S(n_i + n_j) + n_i n_j \right], \\ \hat{\mathcal{H}}_c &= J \sqrt{\frac{S}{2}} \sin 2\theta \sum_{\langle i,j \rangle} \left[(S - n_i) a_j^\dagger f(n_j) - f(n_i) a_i (S - n_j) \right] + \text{H.c.}, \\ \hat{\mathcal{H}}_d &= 8JS h \sum_i \left[\sqrt{\frac{S}{2}} \cos \theta e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_i} (a_i^\dagger f(n_i) + f(n_i) a_i) \right] \\ &\quad - 8JS h \sum_i [(S - n_i) \sin \theta], \end{aligned} \quad (4.16)$$

する。

ここから Hamiltonian と $\mathcal{M}$ との交換関係を示す。まず、磁化 $\mathcal{M}$ は

$$\mathcal{M} = \frac{1}{N\Omega} \sum_i (S - n_i) \sin \theta - \frac{1}{N\Omega} \sqrt{\frac{S}{2}} \sum_i e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_i} [f(n_i) a_i + a_i^\dagger f(n_i)] \cos \theta, \quad (4.17)$$

のため、 $[\hat{\mathcal{H}}_d, \mathcal{M}] = 0$ は自明である。

次に、 $\mathcal{M}$ を以下のように

$$\begin{aligned} \mathcal{M} &= \mathcal{M}_z + \mathcal{M}_x \\ \mathcal{M}_z &= \frac{1}{N\Omega} \sum_i (S - n_i) \sin \theta \\ \mathcal{M}_x &= -\frac{1}{N\Omega} \sqrt{\frac{S}{2}} \sum_i e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_i} [f(n_i) a_i + a_i^\dagger f(n_i)] \cos \theta \end{aligned} \quad (4.18)$$

成分に分け、それぞれ分割した成分についての交換関係を調べる。まず、 $\hat{\mathcal{H}}_a$ の交換関係を示す。まず、 $\mathcal{M}_z$ との交換関係は、

$$\begin{aligned} \frac{N\Omega[\hat{\mathcal{H}}_a, \mathcal{M}_z]}{JS} &= \sin^3 \theta \sum_{l, \langle i,j \rangle} \left[a_i^\dagger f(n_i) f(n_j) a_j, (S - n_l) \right] \\ &\quad - \cos^2 \theta \sin \theta \sum_{l, \langle i,j \rangle} \left[a_i^\dagger a_j^\dagger f(n_i) f(n_j), (S - n_l) \right] + \text{H.c.} \\ &= JS \cos \theta \sin 2\theta \sum_{\langle i,j \rangle} [f(n_i) f(n_j) a_i a_j - a_i^\dagger a_j^\dagger f(n_i) f(n_j)], \end{aligned} \quad (4.19)$$

であり、 $\mathcal{M}_x$ との交換関係は

$$\begin{aligned} \frac{N\Omega[\hat{\mathcal{H}}_a, \mathcal{M}_x]}{JS} &= \cos^3 \theta \sqrt{\frac{S}{2}} \sum_{l, \langle i, j \rangle} e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_l} \left[a_i^\dagger a_j^\dagger f(n_i) f(n_j), f(n_l) a_l + a_l^\dagger f(n_l) \right] \\ &\quad - \cos \theta \sin^2 \theta \sqrt{\frac{S}{2}} \sum_{l, \langle i, j \rangle} e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_l} \left[a_i^\dagger f(n_i) f(n_j) a_j, f(n_l) a_l + a_l^\dagger f(n_l) \right] \\ &\quad + \text{H.c.} \\ &= -J \sqrt{\frac{S}{2}} \cos \theta \sum_{\langle i, j \rangle} e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_i} \left[(S - n_i) a_j^\dagger f(n_j) - (S - n_j) a_i^\dagger f(n_i) \right] - \text{H.c.}, \end{aligned} \quad (4.20)$$

である。

次に、 $\hat{\mathcal{H}}_b$ の交換関係を示す。この交換関係は、 $\mathcal{M}_z$ に関しては自明

$$\frac{N\Omega[\hat{\mathcal{H}}_b, \mathcal{M}_z]}{JS} = 0, \quad (4.21)$$

である。一方、 $\mathcal{M}_x$ に関する交換関係は

$$\begin{aligned} \frac{N\Omega[\hat{\mathcal{H}}_b, \mathcal{M}_x]}{JS(\cos \theta - \sin \theta \sin 2\theta)} &= \sqrt{\frac{S}{2}} \sum_{l, \langle i, j \rangle} e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_l} [(S - n_i)(S - n_j), a_l^\dagger f(n_l)] \\ &\quad + \sqrt{\frac{S}{2}} \sum_{l, \langle i, j \rangle} e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_l} [(S - n_i)(S - n_j), f(n_l) a_l] \\ &= \sqrt{\frac{S}{2}} \sum_{\langle i, j \rangle} e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_i} \left[(S - n_i) a_j^\dagger f(n_j) - (S - n_j) a_i^\dagger f(n_i) \right] - \text{H.c.}, \end{aligned}$$

となる。ここで

$$\cos \theta \cos 2\theta = \cos \theta - \sin \theta \sin 2\theta, \quad (4.22)$$

を用いた。

次に、 $\hat{\mathcal{H}}_c$ の交換関係を示す。まず、 $\mathcal{M}_z$ の交換関係は、

$$\begin{aligned} \frac{N\Omega[\hat{\mathcal{H}}_c, \mathcal{M}_z]}{J \sin \theta \sin 2\theta} &= \sqrt{\frac{S}{2}} \sum_{l, \langle i, j \rangle} e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_i} (S - n_i) [a_j^\dagger f(n_j), (S - n_l)] \\ &\quad - \sqrt{\frac{S}{2}} \sum_{l, \langle i, j \rangle} e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_i} (S - n_j) [a_i^\dagger f(n_i), (S - n_l)] + \text{H.c.} \\ &= \sqrt{\frac{S}{2}} \sum_{\langle i, j \rangle} e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_i} [(S - n_i) a_j^\dagger f(n_j) - (S - n_j) a_i^\dagger f(n_i)] - \text{H.c.}, \end{aligned} \quad (4.23)$$

である。次に、 $\mathcal{M}_x$ との交換関係は、

$$\begin{aligned} \frac{N\Omega[\hat{\mathcal{H}}_c, \mathcal{M}_x]}{J \sin \theta \sin 2\theta} &= \frac{1}{2} \sum_{l, \langle i, j \rangle} e^{i\mathbf{Q} \cdot (\mathbf{r}_i + \mathbf{r}_l)} [(S - n_j) f(n_i) a_i, f(n_l) a_l + a_l^\dagger f(n_l)] \\ &\quad - \frac{1}{2} \sum_{l, \langle i, j \rangle} e^{i\mathbf{Q} \cdot (\mathbf{r}_i + \mathbf{r}_l)} [(S - n_i) f(n_j) a_j, f(n_l) a_l + a_l^\dagger f(n_l)] + \text{H.c.} \\ &= - \sum_{\langle i, j \rangle} [f(n_i) f(n_j) a_i a_j - a_i^\dagger a_j^\dagger f(n_i) f(n_j)], \end{aligned} \quad (4.24)$$

である。

以上より、成分に分解して磁化の交換関係を示した。これらの交換関係から、式 (4.19)、式 (4.24) が打消し合い、また式 (4.20)、式 (4.22)、式 (4.23) が打ち消しあうことがわかる。したがって、2. 磁化の保存則は Holstein-Primakoff 変換によって破れることはない。

ここに更に n 次の摂動近似 (線形スピン波近似など) を行っても、式 (4.19)、式 (4.24) や式 (4.20)、式 (4.22)、式 (4.23) が打消し合う関係が壊れることはない。このため、3. 磁化 (磁場方向成分) の保存は、 n 次までの Holstein-Primakoff 展開をした後も満たされる。以上より、実験室系のスピン演算子に施す様々な操作や、近似により、磁化の保存則が破れることはない。

本研究では、磁化 (磁場方向成分) が保存する場合に限定し、その保存則に基づいて noncollinear な構造を基底状態とする系にも適用可能なスピン流密度演算子を定義する。ここで反強磁性体に磁気異方性などを考えたとき、磁場方向の磁化は一般には保存しない。以後議論するスピン流密度演算子の定義は、磁気異方性をもつ系には適用できない。

4.3 Spin Stiffness

本節では、noncollinear な系である、磁場中の正方格子反強磁性体の spin stiffness を文献 [34,36,39,42,43] を参考にして計算する。

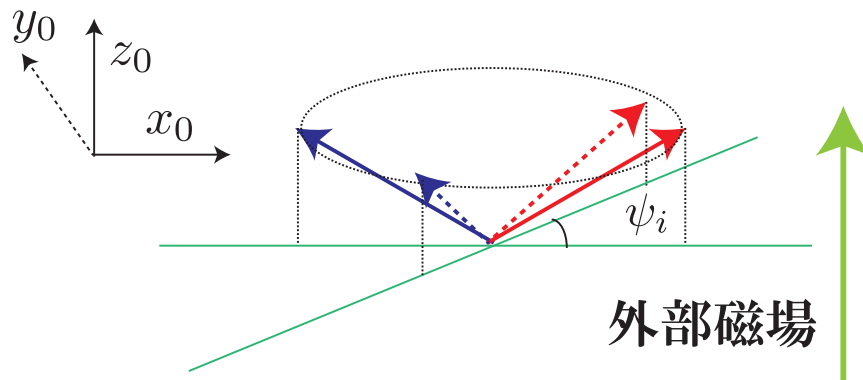


図 4.3 i サイトのスピンに対して磁場に垂直方向に位相 ψ_i を局所的に回転させる。

まず実験室系のスピン演算子について、以下のスピン演算子

$$\begin{aligned}\tilde{S}_i^+ &= S_i^{x_0} + iS_i^{y_0}, \\ \tilde{S}_i^- &= S_i^{x_0} - iS_i^{y_0},\end{aligned}\tag{4.25}$$

を考える [36, 43]。ここに i サイトのスピン演算子に対し、図 4.3 のように磁場に垂直方向 (x_0 - y_0 面内) に位相 ψ_i を局所的に回転させる [補足：この操作は磁化が保存するものを考えている。]。これは、スピン演算子を

$$\begin{aligned}\tilde{S}_i^+ &\rightarrow \tilde{S}_i^+ e^{i\psi_i}, \\ \tilde{S}_i^- &\rightarrow \tilde{S}_i^- e^{-i\psi_i}, \\ S_i^{z_0} &\rightarrow S_i^{z_0},\end{aligned}\tag{4.26}$$

と変換することに対応する [29, 36, 43]。

ここで、一様な位相のねじれ $\psi_{ij} = \psi_i - \psi_j = \psi$ を考える。このように、ねじられた Heisenberg Hamiltonian $[\hat{H}(\psi)]$ を ψ の2次まで展開すると、

$$\begin{aligned}\hat{H}(\psi) &= J \sum_{\langle i,j \rangle} \left[\frac{\tilde{S}_i^+ \tilde{S}_j^- e^{i\psi} + \tilde{S}_i^- \tilde{S}_j^+ e^{-i\psi}}{2} + S_i^{z_0} S_j^{z_0} \right] - H \sum_i S_i^{z_0} \\ &\approx J \sum_{\langle i,j \rangle} \left[\frac{\tilde{S}_i^+ \tilde{S}_j^- + \tilde{S}_i^- \tilde{S}_j^+}{2} + S_i^{z_0} S_j^{z_0} \right] - H \sum_i S_i^{z_0} \\ &\quad + \psi \sum_{\langle i,j \rangle} iJ \left[\frac{\tilde{S}_i^+ \tilde{S}_j^- - \tilde{S}_i^- \tilde{S}_j^+}{2} \right] - \frac{\psi^2}{2} \sum_{\langle i,j \rangle} J \left[\frac{\tilde{S}_i^+ \tilde{S}_j^- + \tilde{S}_i^- \tilde{S}_j^+}{2} \right] \\ &= \hat{\mathcal{H}} + \psi \sum_i (J_{s\ i, i+\hat{x}} + J_{s\ i, i+\hat{y}}) - \frac{\psi^2}{2} \sum_i (\hat{T}_{i, i+\hat{x}} + \hat{T}_{i, i+\hat{y}}),\end{aligned}\tag{4.27}$$

となる。ここで $\hat{\mathcal{H}}$ は式 (2.1) に導入したものである。また、 $\hat{\mu} = \hat{x}, \hat{y}$ のとき、

$$\begin{aligned}J_{s\ i, i+\hat{\mu}} &= iJ \left[\frac{\tilde{S}_i^+ \tilde{S}_{i+\hat{\mu}}^- - \tilde{S}_i^- \tilde{S}_{i+\hat{\mu}}^+}{2} \right] \\ &= J \left[S_i^{x_0} S_{i+\hat{\mu}}^{y_0} - S_i^{y_0} S_{i+\hat{\mu}}^{x_0} \right]\end{aligned}\tag{4.28}$$

$$\begin{aligned}\hat{T}_{i, i+\hat{\mu}} &= J \left[\frac{\tilde{S}_i^+ \tilde{S}_{i+\hat{\mu}}^- + \tilde{S}_i^- \tilde{S}_{i+\hat{\mu}}^+}{2} \right] \\ &= J \left[S_i^{x_0} S_{i+\hat{\mu}}^{x_0} + S_i^{y_0} S_{i+\hat{\mu}}^{y_0} \right],\end{aligned}\tag{4.29}$$

とした。

また、ここで spin stiffness ρ_s は、

$$\rho_s = \frac{1}{N} \frac{\partial^2 \hat{\mathcal{H}}(\psi)}{\partial \psi^2} \Big|_{\psi=0} = \frac{1}{N} \sum_i (\hat{T}_{i, i+\hat{x}} + \hat{T}_{i, i+\hat{y}}),\tag{4.30}$$

となる [34, 36, 43]。

この $J_{s\ i, i+\hat{x}}$ は後述のスピン流密度演算子、 $\hat{T}_{i, i+\hat{x}}$ 、 ρ_s はスピン伝導度の総和と関係する量となっている。したがって、磁化の保存則から導いたスピン流密度演算子とスピン伝導度の総和則は、各サイトのスピンに隣接スピンに対する位相のねじれ ψ を加えたときの $\hat{H}(\psi)$ の、 ψ の1次、2次の係数が関係した量になっている。

4.1で紹介した通り、電流 [23, 28–31] や collinear 系のスピン流 [23, 39, 42, 43] などでも、同様の関係を得ることができる。

4.4 三角格子反強磁性体

本研究では、比較のために磁場下の三角格子 Heisenberg 反強磁性体のスピン伝導度を計算した。[この Hamiltonian は式 (2.1) と同じである。低磁場下 ($H \leq 3JS$) 三角格子のスピン canting angle に関しては [44]、ゼロ磁場下のスピン波理論は [7] の先行研究に基づいて計算した [27]。

まず図 4.4 のような、磁場下の三角格子反強磁性体を考える。まず正方格子反強磁性体の場合と同様にして、

スピン演算子を実験室系 $S_i^{\mu 0} (\mu = x, y, z)$ から回転座標系 $S_i^{\mu} (\mu = x, y, z)$ について

$$\begin{aligned} S_j^{x_0} &= S_j^z \sin \theta_j + S_j^x \cos \theta_j, \\ S_j^{y_0} &= S_j^y, \\ S_j^{z_0} &= S_j^z \cos \theta_j - S_j^x \sin \theta_j, \end{aligned} \quad (4.31)$$

と変換する [7, 27]。

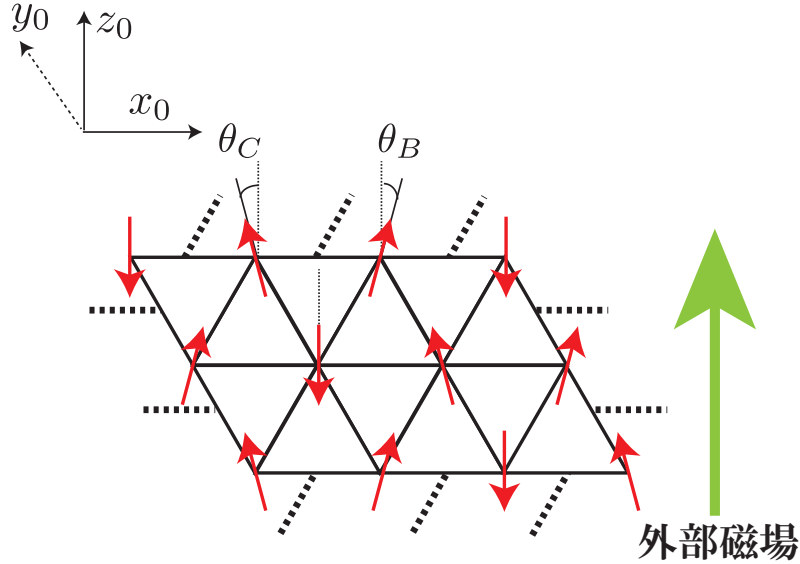


図 4.4 磁場下の三角格子反強磁性体。磁場方向に 2 つの副格子 (B、C) のスピンの傾き、磁場と反対方向に副格子 A のスピンの配列する。これは、磁場が $H \leq 3JS$ の場合を考えている。

ここで、これらの canting angle θ_i は、正方格子 [6, 27] の場合と同様にして、基底状態のエネルギーを最小化するように決める。また、ABC は副格子であり、各副格子の位相角は

$$\begin{aligned} \theta_A &= -\pi, \\ \theta_B &= -\theta_C = \cos^{-1} \left[\frac{1}{2} \left(\frac{H}{3JS} + 1 \right) \right], \end{aligned} \quad (4.32)$$

となる [44]。

さらに、正方格子と同様にして Fourier 変換・Bogoliubov 変換を施すと、励起スペクトルは

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_2 &= \sum_{\mathbf{k}} \left[\omega_{\mathbf{k}} b_{\mathbf{k}}^{\dagger} b_{\mathbf{k}} + \frac{\omega_{\mathbf{k}} - A_{\mathbf{k}}}{2} \right], \\ \omega_{\mathbf{k}} &= 3JS \sqrt{(1 + 2\gamma_{\mathbf{k}}) \left(1 + \gamma_{\mathbf{k}} \left(\frac{1}{3} \left(\frac{h}{3JS} \right)^2 - 1 \right) \right)}, \\ \gamma_{\mathbf{k}} &= \frac{1}{3} \left(\cos k_x + 2 \cos \frac{k_x}{2} \cos \frac{\sqrt{3}k_y}{2} \right), \\ u_{\mathbf{k}}^2, v_{\mathbf{k}}^2 &= \frac{A_{\mathbf{k}}}{2\omega_{\mathbf{k}}} \pm \frac{1}{2}, \quad u_{\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}} = \frac{B_{\mathbf{k}}}{2\omega_{\mathbf{k}}}, \end{aligned} \quad (4.33)$$

となる [27]。

正方格子と同様にして、磁場中では Γ 点に磁場と同じ大きさのエネルギーギャップを生じる。また、正方格子の場合 [式 (2.32)] と同様にして canting angle の量子補正を求めると

$$\cos^2 \theta' = \frac{1}{4} \left[1 - \frac{2H}{3JS} \left(1 + \frac{w}{S} \right) + \left(\frac{H}{3JS} \right)^2 \left(1 + 2\frac{w}{S} \right) \right] \quad (4.34)$$

となる [27]。

この三角格子反強磁性体の Fourier 変換について考える。この Fourier 変換は、3つの副格子のスピン演算子を全て同一視している。この同一視は、正方格子の場合やゼロ磁場下の三角格子の場合には正しい。しかし、磁場下の三角格子反強磁性体の場合には厳密には正しくない。なぜなら3つの副格子の中には、磁場と反平行方向を向くスピン [1つの副格子] と、磁場方向に向かって傾いたスピン [2つの副格子] があり、それらは揺らぎ方が異なるため同一視できないためである。したがって、このスピン波の取扱いは3つの副格子のスピン揺らぎ方が異なる磁場下では、厳密には正しくない。[十分に低磁場では、この近似に基づく計算と3つの揺らぎの違いを考慮した結果は大きくは隔たりがないものと期待している。] また、揺らぎ方を正しく取り入れるためには3つの副格子にそれぞれ3種類の Holstein-Primakoff ボソンを導入して対角化する必要がある。本研究では、この Fourier 変換が厳密には正しくない上記の方法によってスピン伝導度を調べた [補足：三角格子 Heisenberg 反強磁性体においても磁化が保存するため、磁化保存則を用いた。]。これは正方格子との比較のために行ったのだが、この結果は3つの副格子ごとに異なる揺らぎを取り込んだものと比べて幾らかの誤差を伴った結果になっている。

4.5 スピン流密度演算子の定義

4.1 節の Sentef らの先行研究で、磁化が保存することを利用して定義したスピン流密度演算子を紹介した [22, 23]。4.2 節では、注目している磁場中の正方格子 Heisenberg 反強磁性体で、磁化が保存することを示した。ここでは 4.1 節の先行研究に基づいて、4.2 節に示した磁化保存則を用いて連続方程式からスピン流を定義する [27]。

長波長極限における連続方程式は

$$\frac{1}{\Omega} \partial_t S_i^{z_0} = - \frac{j_{s \ i, i+\hat{x}} - j_{s \ i, i-\hat{x}}}{a_0} \quad (4.35)$$

である。ここで格子定数は a_0 、局所磁化密度は $S_i^{z_0}/\Omega$ 、 $j_{s \ i, i+\hat{x}}$ はスピン流密度演算子である [27]。ここで式 (4.35) は、磁場勾配をかける方向にのみスピン流が流れることを想定し、連続方程式を粗視化している。言い換えると、実際はボンドの全ての方向にスピンは流れるが、平均として磁場勾配の方向にしかスピンが流れないことをあらかじめ想定し、磁場勾配のない方向の流れ成分を無視している。また、この粗視化は先行研究 [22, 23] でも行われている。ここに更に Heisenberg 運動方程式

$$\partial_t S_i^{z_0} = i \left[\hat{H}, S_i^{z_0} \right], \quad (4.36)$$

を連立することによって、 $j_{s \ i, i+\hat{x}}$ を定義する [27]。

スピン流密度演算子 $j_{s\ i, i+\hat{x}}$ を、実験室系のスピン演算子で表示すると

$$\begin{aligned} j_{s\ i, i+\hat{x}} &= i \frac{a_0}{\Omega} \left[\hat{H}_{i, i+\hat{x}}, S_{i+\hat{x}}^{z_0} \right] = \frac{a_0}{\Omega} J (S_i^{x_0} S_{i+\hat{x}}^{y_0} - S_i^{y_0} S_{i+\hat{x}}^{x_0}), \\ \hat{H}_{i, i+\hat{x}} &= JS_i \cdot S_{i+\hat{x}}, \end{aligned} \quad (4.37)$$

となる。

これは、式 (4.4) の collinear 系のスピン流密度演算子 [22, 24, 25, 40] と同様の形にまとまっている。ただし、noncollinear 系では磁場の方向 z_0 とスピンの量子化軸の方向 z が異なる [$0 \leq h < 1$] が、collinear 系ではスピンの量子化軸と磁場の方向が共線上である。実験室系でのスピン流密度演算子の表式は、系に依存せず、磁化が保存する限り三角格子やカゴメ格子反強磁性体などにも共通して、使うことができる [27]。

さらに、式 (4.37) は 4.3 節の式 (4.28) と同じ形にまとまっていることもわかる。ここからスピン流密度演算子は、磁化が保存するように隣のスピン同士で ψ ずつねじらせた場合に、Hamiltonian の ψ の一次の係数の $\hat{x}$ -成分（磁場勾配方向の成分）と関係する量になっていることがわかる。ここで 4.1 節に紹介したように、collinear な系においても、位相のねじれの係数とスピン流密度演算子の間に同様の関係が成立する。これらから磁場方向に量子化軸をとった実験室系のスピン演算子でそのスピン流密度演算子を表示した場合、collinear 系と比較して良い対応関係ができていといえる。

ここに、この実験室系のスピン演算子を回転座標系のスピン演算子で表示し、Holstein-Primakoff 変換をする。この変換によって $j_{s\ i, i+\hat{x}}$ は、 $S^{n/2}$ ($n = 3, 2, 1, 0, -1 \dots$) 次の項 $j_{s\ i, i+\hat{x}\ n/2}$ によって

$$j_{s\ i, i+\hat{x}} = \sum_n j_{s\ i, i+\hat{x}\ n/2} \quad n = 3, 2, 1 \dots \quad (4.38)$$

展開できる [27]。

正方格子反強磁性体における、 $j_{s\ i, i+\hat{x}\ n/2}$ ($n = 3, 2, 1, 0$) は、

$$\begin{aligned} j_{s\ i, i+\hat{x}\ 3/2} &= -\frac{ia_0JS}{\Omega} \sqrt{\frac{S}{2}} e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_i} \cos \theta (a_i - a_i^\dagger) \\ &\quad - \frac{ia_0JS}{\Omega} \sqrt{\frac{S}{2}} e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_i} \cos \theta (a_{i+\hat{x}} - a_{i+\hat{x}}^\dagger), \end{aligned} \quad (4.39)$$

$$j_{s\ i, i+\hat{x}\ 1} = -iJS \sum_i (a_i^\dagger a_{i+\hat{x}} - a_i a_{i+\hat{x}}^\dagger) \sin \theta, \quad (4.40)$$

$$\begin{aligned} j_{s\ i, i+\hat{x}\ 1/2} &= i \sqrt{\frac{S}{2}} \sum_i e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_i} \cos \theta ((a_i - a_i^\dagger) n_{i+\hat{x}} + n_i (a_{i+\hat{x}} - a_{i+\hat{x}}^\dagger)) \\ &\quad + \frac{i}{4} \sqrt{\frac{S}{2}} \sum_i e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_i} \cos \theta (n_i a_i - a_i^\dagger n_i + n_{i+\hat{x}} a_{i+\hat{x}} - a_{i+\hat{x}}^\dagger n_{i+\hat{x}}), \end{aligned} \quad (4.41)$$

$$j_{s\ i, i+\hat{x}\ 0} = i \frac{1}{4} J \sum_i (a_i^\dagger (n_i + n_{i+\hat{x}}) a_{i+\hat{x}} - a_{i+\hat{x}}^\dagger (n_i + n_{i+\hat{x}}) a_i) \sin \theta, \quad (4.42)$$

となる。ここで $j_{s\ i, i+\hat{x}\ n}$ ($n = 0, 1$) はゼロ磁場下でゼロであり、有限磁場下でのみ有限値をとりうることをわかる。

ここで三角格子 Heisenberg 反強磁性体は、正方格子反強磁性体と同様にして磁化（磁場方向成分）が保存す

る。この保存則から、正方格子の場合と同様にして、三角格子の $j_{s\ i, i+\hat{x}\ n/2}$ の主要項 ($n=3$) を導出すると、

$$j_{s\ i, i+\hat{x}\ 3/2} = \frac{ia_0JS}{\Omega} \sqrt{\frac{S}{2}} \sin \theta_{i+\hat{x}} (a_i - a_i^\dagger) - \frac{ia_0JS}{\Omega} \sqrt{\frac{S}{2}} \sin \theta_i (a_{i+\hat{x}} - a_{i+\hat{x}}^\dagger), \quad (4.43)$$

となる [27]。

このスピン流密度演算子を用い、各格子のスピン伝導度を計算する。また、スピン伝導度の計算に際しては、ここに Fourier 変換、Bogoliubov 変換を施したもので計算を行う。

4.6 線形応答理論

本節では、電気伝導度の久保公式 [45] を用いた計算を参考に、絶対零度の noncollinear 系のスピン伝導度 $\sigma_s(\omega)$ を計算する [27]。この計算は、電気伝導度 [45]、1次元系 [24, 25, 39]・Ising 異方性を持つ正方格子反強磁性体 [22, 23] のスピン伝導度の先行研究を参考にしている。

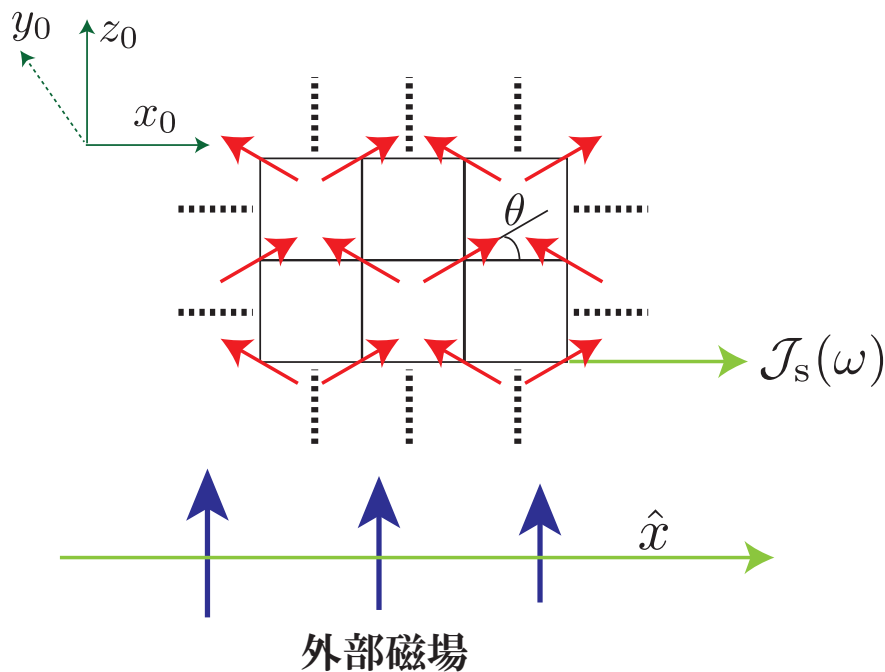


図 4.5 一様外部磁場の下で、十分緩やかな磁場勾配を $\hat{x}$ -方向にかける（磁場勾配は分かりやすくするため極端に表示してある）。また、一様磁場と十分緩やかな磁場勾配は同じ方向にかけている。この磁場勾配によって、その勾配と同方向にスピン流が誘起される。

図 4.5 のように、 z_0 方向に一様磁場をかけ、交換相互作用のボンドの方向のうち $\hat{x}$ -方向に十分緩やかな磁場勾配 $\nabla_{\hat{x}} h$ (z_0 方向) をかける。このとき磁場勾配の方向に沿って誘起されるスピン流を考え [22, 23, 27, 40]、絶対零度におけるスピン伝導度の表式を具体的に導出する。ここから、Schödinger 表示の基底状態を $|\psi_s\rangle$ と書く [45]。また、簡単のため $j_{s\ l, l+\hat{x}} = j_s(l)$ と書く。

磁場勾配によって誘起されたスピン流 $\mathcal{J}_s(l, t)$ は

$$\mathcal{J}_s(l, t) = \langle \psi_s | e^{i(\hat{H} + \hat{H}')t} j_s(l) e^{-i(\hat{H} + \hat{H}')t} | \psi_s \rangle, \quad (4.44)$$

と書ける [45]。(t は時間を表す。) このとき、摂動 Hamiltonian $\hat{\mathcal{H}}'$ は

$$\hat{\mathcal{H}}' = -H \sum_m S_i^{z_0}, \quad (4.45)$$

である。

ここで、 $\hat{U}(t)$ を

$$\begin{aligned} \hat{U}(t) &= e^{-i\hat{\mathcal{H}}'t} = e^{i\hat{\mathcal{H}}t} e^{-i(\hat{\mathcal{H}}+\hat{\mathcal{H}}')t} \\ e^{-i(\hat{\mathcal{H}}+\hat{\mathcal{H}}')t} &= e^{-i\hat{\mathcal{H}}t} \hat{U}(t), \end{aligned} \quad (4.46)$$

とおくと、

$$\mathcal{J}_s(l, t) = \langle \psi_s | \hat{U}^\dagger(t) e^{i\hat{\mathcal{H}}t} j_s(l) e^{-i\hat{\mathcal{H}}t} \hat{U}(t) | \psi_s \rangle \quad (4.47)$$

$$= \langle \psi_s | \hat{U}^\dagger(t) e^{i\hat{\mathcal{H}}t} j_s(l, t) e^{-i\hat{\mathcal{H}}t} \hat{U}(t) | \psi_s \rangle, \quad (4.48)$$

となる [45]。ここで

$$\begin{aligned} \mathcal{H}'(t) &= e^{i\hat{\mathcal{H}}t} \mathcal{H}' e^{-i\hat{\mathcal{H}}t}, \\ j_s(l, t) &= e^{i\hat{\mathcal{H}}t} j_s(l) e^{-i\hat{\mathcal{H}}t}, \end{aligned} \quad (4.49)$$

と書く [45]。

相互作用表示の基底状態 $|\psi_I\rangle$ は

$$|\psi_s\rangle = T \exp \left[-i \int_{-\infty}^0 dt' \hat{\mathcal{H}}'(t') \right] |\psi_I\rangle, \quad (4.50)$$

と書ける (T は時間順序積) [45]。ここで、

$$\hat{U}(t) |\psi_s\rangle = T \exp \left[-i \int_0^t dt' \hat{\mathcal{H}}'(t') \right] |\psi_s\rangle, \quad (4.51)$$

である。したがって、 $\hat{U}(t) |\psi_s\rangle$ は $\mathcal{S}$ 行列によって、

$$\begin{aligned} \hat{U}(t) |\psi_s\rangle &= T \exp \left[-i \int_{-\infty}^0 dt' \hat{\mathcal{H}}'(t') - i \int_0^t dt' \hat{\mathcal{H}}'(t') \right] |\psi_I\rangle \\ &= T \exp \left[-i \int_{-\infty}^t dt' \hat{\mathcal{H}}'(t') \right] |\psi_I\rangle \\ &= \mathcal{S}(-\infty, t) |\psi_I\rangle, \end{aligned} \quad (4.52)$$

と書ける [45]。したがって、式 (4.47) は

$$\mathcal{J}_s(l, t) = \langle \psi_s | \mathcal{S}^\dagger(-\infty, t) j_s(l, t) \mathcal{S}(-\infty, t) | \psi_s \rangle, \quad (4.53)$$

となる [45]。

ここで、 $\hat{\mathcal{H}}'$ の線形項までのみを残す近似を $\mathcal{S}$ 行列に施すと

$$\mathcal{S}(-\infty, t) |\psi_s\rangle \approx \left[1 - i \int_{-\infty}^t dt' \hat{\mathcal{H}}'(t') \right] |\psi_s\rangle, \quad (4.54)$$

$$\langle \psi_s | \mathcal{S}^\dagger(-\infty, t) \approx \langle \psi_s | \left[1 + i \int_{-\infty}^t dt' \hat{\mathcal{H}}'(t') \right], \quad (4.55)$$

となる。この近似を式 (4.53) にすると、

$$\begin{aligned}\mathcal{J}_s(l, t) &= \langle \psi_s | \left[1 + i \int_{-\infty}^t dt' \hat{\mathcal{H}}'(t') \right] j_s(l, t) \left[1 - i \int_{-\infty}^t dt' \hat{\mathcal{H}}'(t') \right] | \psi_s \rangle, \\ &= \langle \psi_s | j_s(l, t) | \psi_s \rangle \\ &\quad - \langle \psi_s | i \int_{-\infty}^t dt' \left[j_s(l, t) \hat{\mathcal{H}}'(t') - \hat{\mathcal{H}}'(t') j_s(l, t) \right] | \psi_s \rangle, \\ &= \langle \psi_s | j_s(l, t) | \psi_s \rangle - \langle \psi_s | i \int_{-\infty}^t dt' \left[j_s(l, t), \hat{\mathcal{H}}'(t') \right] | \psi_s \rangle,\end{aligned}\tag{4.56}$$

となる [45]。

ここで磁場勾配などが存在しないとき、スピン流が流れないことから

$$\langle \psi_s | j_s(l, t) | \psi_s \rangle = 0,\tag{4.57}$$

と考える [45]。このとき、式 (4.56) は

$$\mathcal{J}_s(l, t) = -i \int_{-\infty}^t dt' \langle \psi_I | \left[j_s(l, t), \hat{\mathcal{H}}'(t') \right] | \psi_I \rangle,\tag{4.58}$$

となる。式 (4.45) を式 (4.58) に代入すると、

$$\begin{aligned}\mathcal{J}_s(l, t) &= i \sum_j \int_{-\infty}^t dt' \langle \psi_I | \left[j_s(l, t), S_j^{z_0}(t') \right] | \psi_I \rangle H(j, t), \\ &= i \sum_j \int_{-\infty}^{\infty} dt' \Theta(t - t') \langle \psi_I | \left[j_s(l, t), S_j^{z_0}(t') \right] | \psi_I \rangle H(j, t'),\end{aligned}\tag{4.59}$$

となる。ここで、 $\Theta(t - t')$ は階段関数である [22, 23]。

さらに、式 (4.59) に Fourier 変換

$$\begin{aligned}\tilde{F}(l, \omega) &= \int_{-\infty}^{\infty} dt F(l, t) e^{i\omega t}, \\ F(l, t) &= \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \tilde{F}(l, \omega) e^{-i\omega t},\end{aligned}\tag{4.60}$$

をする。このとき $\mathcal{J}_s(l, \omega)$ は、

$$\begin{aligned}\mathcal{J}_s(l, \omega) &= i \sum_j \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} dt dt' \xi(l, j, t - t') e^{i\omega(t-t')} H(j, t') e^{i\omega t'}, \\ \xi(l, j, t - t') &= i \Theta(t - t') \langle \psi_I | \left[j_s(l, t), S_j^{z_0}(t') \right] | \psi_I \rangle,\end{aligned}\tag{4.61}$$

となる [22, 23]。ここに $t_1 = t - t'$ を代入すると

$$\begin{aligned}\mathcal{J}_s(l, \omega) &= \sum_j \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \xi(l, j, t_1) e^{i\omega t_1} \int_{-\infty}^{\infty} dt' H(j, t') e^{i\omega t'} \\ &= \sum_j \xi(l, j, \omega) H(j, \omega),\end{aligned}\tag{4.62}$$

となる。ここで、

$$\begin{aligned}\xi(l, j, \omega) &= i \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \Theta(t_1) \langle \psi_I | \left[j_s(l, t_1), S_j^{z_0}(0) \right] | \psi_I \rangle e^{i\omega t_1} \\ &= i \int_0^{\infty} dt_1 \langle \psi_I | \left[j_s(l, t_1), S_j^{z_0}(0) \right] | \psi_I \rangle e^{i\omega t_1},\end{aligned}\tag{4.63}$$

である [22, 23]。

次に、波数空間への Fourier 変換

$$\begin{aligned}\tilde{G}(\mathbf{q}, \omega) &= \sum_l G(l, \omega) e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_l}, \\ G(l, \omega) &= \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} \tilde{G}(\mathbf{q}, \omega) e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_l},\end{aligned}\quad (4.64)$$

を施す [22, 23]。すると $\mathcal{J}_s(\mathbf{q}, \omega)$ は、

$$\mathcal{J}_s(\mathbf{q}, \omega) = \sum_{l,j} \xi(l, j, \omega) e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_l} H(j, \omega), \quad (4.65)$$

である。また、式 (4.64) より $H(j, \omega)$ を Fourier 表示すると、

$$\begin{aligned}\mathcal{J}_s(\mathbf{q}, \omega) &= \sum_{l,j} \xi(l, j, \omega) e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_l} \left(\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_j} H(\mathbf{k}, \omega) \right) \\ &= \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \sum_{l,j} \xi(l, j, \omega) e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_l} e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_j} H(\mathbf{k}, \omega),\end{aligned}\quad (4.66)$$

となる。ここで、上式の右辺は

$$\begin{aligned}& \sum_{\mathbf{k}} \sum_{l,j} \xi(l, j, \omega) e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_l} e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_j} H(\mathbf{k}, \omega) \\ &= \sum_{\mathbf{k}} \sum_{l,j} \langle \psi_I | [j_s(l, t_1), S_j^{z_0}(0)] | \psi_I \rangle e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_l} e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_j} H(\mathbf{k}, \omega) \\ &= \sum_{\mathbf{k}} \langle \psi_I | \left[\sum_l j_s(l, t_1) e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_l}, \sum_j S_j^{z_0}(0) e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_j} \right] | \psi_I \rangle H(\mathbf{k}, \omega) \\ &= \sum_{\mathbf{k}} \langle \psi_I | [j_s(l, \mathbf{q}), S^{z_0}(-\mathbf{k}, 0)] | \psi_I \rangle H(\mathbf{k}, \omega) \\ &= \langle \psi_I | [j_s(l, \mathbf{q}), S^{z_0}(-\mathbf{q}, 0)] | \psi_I \rangle H(\mathbf{q}, \omega),\end{aligned}\quad (4.67)$$

である。[ここで $S^{z_0}(-\mathbf{q}, t)$ は $S_l^{z_0}(t)$ 、 $j_s(-\mathbf{q})$ は $j_{s, i, i+\hat{x}}$ の Fourier 表示である。] これを用いると $\mathcal{J}_s(\mathbf{q}, \omega)$ は、

$$\begin{aligned}\mathcal{J}_s(\mathbf{q}, \omega) &= \xi(\mathbf{q}, \omega) H(\mathbf{q}, \omega) \\ \xi(\mathbf{q}, \omega) &= \frac{i}{N} \int_0^\infty dt_1 \langle \psi_I | [j_s(\mathbf{q}, t_1), S^{z_0}(-\mathbf{q}, 0)] | \psi_I \rangle e^{i\omega t_1},\end{aligned}\quad (4.68)$$

となる [22, 23]。

ここから、 $\xi(\mathbf{q}, \omega)$ を議論する。部分積分を $\xi(\mathbf{q}, \omega)$ にすると、

$$\begin{aligned}\xi(\mathbf{q}, \omega) &= \frac{i}{N} \int_0^\infty dt_1 \langle \psi_I | [j_s(\mathbf{q}, t_1), S^{z_0}(-\mathbf{q}, 0)] | \psi_I \rangle e^{i(\omega+i\delta)t_1} \\ &= -\frac{1}{iN(\omega+i\delta)} \langle \psi_I | i[j_s(\mathbf{q}, 0), S^{z_0}(-\mathbf{q}, 0)] | \psi_I \rangle \\ &\quad + \frac{\Omega}{N(\omega+i\delta)} \int_0^\infty dt_1 \langle \psi_I | [j_s(\mathbf{q}, t_1), \partial_t S^{z_0}(-\mathbf{q}, 0)] | \psi_I \rangle e^{i(\omega+i\delta)t_1},\end{aligned}\quad (4.69)$$

となる。ここで、連続方程式の長波長極限における Fourier 表示は、

$$iq_x j_s(-\mathbf{q}, t) = \frac{1}{\Omega} \partial_t S^{z_0}(-\mathbf{q}, t), \quad (4.70)$$

となる [22, 23, 27]。式 (4.70) を式 (4.69) に代入すると、

$$\begin{aligned}\xi(\mathbf{q}, \omega) &= \frac{i}{N} \int_0^\infty dt_1 \langle \psi_I | [j_s(\mathbf{q}, t_1), S^{z_0}(-\mathbf{q}, 0)] | \psi_I \rangle e^{i(\omega+i\delta)t_1} \\ &= -\frac{1}{iN(\omega+i\delta)} \langle \psi_I | i[j_s(\mathbf{q}, 0), S^{z_0}(-\mathbf{q}, 0)] | \psi_I \rangle \\ &\quad + \frac{iq_x \Omega}{N(\omega+i\delta)} \int_0^\infty dt_1 \langle \psi_I | [j_s(\mathbf{q}, t_1), j_s(-\mathbf{q}, 0)] | \psi_I \rangle e^{i(\omega+i\delta)t_1},\end{aligned}\quad (4.71)$$

となる。

ここで、右辺第一項に含まれる $[j_s(\mathbf{q}), S^{z_0}(-\mathbf{q})]$ に注目する。この交換関係は、

$$\begin{aligned}i[j_s(\mathbf{q}), S^{z_0}(-\mathbf{q})] &= i \frac{Ja_0}{\Omega} \sum_l [S_l^{x_0} S_{l+\hat{x}}^{y_0} - S_l^{y_0} S_{l+\hat{x}}^{x_0}, S_l^{z_0}] e^{i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{r}_l - \mathbf{r}_{l+\hat{x}})} \\ &= \frac{Ja_0}{\Omega} \sum_l (S_l^{x_0} S_{l+\hat{x}}^{x_0} + S_l^{y_0} S_{l+\hat{x}}^{y_0}) \\ &\quad - \frac{Ja_0}{\Omega} \sum_l (S_{l-\hat{x}}^{x_0} S_l^{x_0} + S_{l-\hat{x}}^{y_0} S_l^{y_0}) e^{-iq_x} \\ &= \frac{Ja_0}{\Omega} \sum_l (S_l^{x_0} S_{l+\hat{x}}^{x_0} + S_l^{y_0} S_{l+\hat{x}}^{y_0}) (1 - e^{-iq_x}),\end{aligned}\quad (4.72)$$

となる。ここで、長波長極限 $[(1 - e^{-iq_x}) \rightarrow iq_x]$ は

$$\begin{aligned}i[j_s(\mathbf{q}), S^{z_0}(-\mathbf{q})] &= \frac{Ja_0}{\Omega} \sum_l (S_l^{x_0} S_{l+\hat{x}}^{x_0} + S_l^{y_0} S_{l+\hat{x}}^{y_0}) (-iq_x) = \frac{a_0}{\Omega} \hat{T} iq_x, \\ [\hat{T} = J \sum_l (S_l^{x_0} S_{l+\hat{x}}^{x_0} + S_l^{y_0} S_{l+\hat{x}}^{y_0})] &= \sum_l \hat{T}_{l, l+\hat{x}},\end{aligned}\quad (4.73)$$

となる。この $\hat{T}$ は、実験室系の交換相互作用に対する xy 成分からの寄与に対応する。また、後述のスピン伝導度の総和とも関係する量である。

簡単のため、 $\langle \psi_I | A(\mathbf{q}, \omega) | \psi_I \rangle = \langle A(\mathbf{q}, \omega) \rangle$ と書く。式 (4.71) と式 (4.73) より、 $\xi(\mathbf{q}, \omega)$ は、

$$\begin{aligned}\xi(\mathbf{q}, \omega) &= \frac{a_0 \langle \hat{T} \rangle}{\Omega N} \frac{i}{(\omega+i\delta)} iq_x \\ &\quad + \frac{iq_x \Omega}{N(\omega+i\delta)} \int_0^\infty dt_1 \langle \psi_I | [j_s(\mathbf{q}, t_1), j_s(-\mathbf{q}, 0)] | \psi_I \rangle e^{i(\omega+i\delta)t_1},\end{aligned}\quad (4.74)$$

となる。

伝導度を計算するためには、実部 $\text{Re}[\xi(\mathbf{q}, \omega)]$ を考えればよい。実部 $\text{Re}[\xi(\mathbf{q}, \omega)]$ は、

$$\begin{aligned}\text{Re}[\xi(\mathbf{q}, \omega)] &= iq_x \frac{\pi a_0 \langle \hat{T} \rangle}{\Omega N} \delta(\omega) \\ &\quad - iq_x \frac{\pi \Omega}{N} \text{Im} \left[\int_0^\infty dt_1 \langle [j_s(\mathbf{q}, t_1), j_s(-\mathbf{q}, 0)] \rangle e^{i(\omega+i\delta)t_1} \right] \delta(\omega) \\ &\quad + iq_x \frac{\Omega}{N} \text{Re} \left[\int_0^\infty dt_1 \frac{\langle [j_s(\mathbf{q}, t_1), j_s(-\mathbf{q}, 0)] \rangle}{\omega} e^{i(\omega+i\delta)t_1} \right],\end{aligned}\quad (4.75)$$

となる [22, 23]。ここで、

$$\begin{aligned}\zeta(\mathbf{q}, \omega) &= \zeta'(\mathbf{q}, \omega) + i\zeta''(\mathbf{q}, \omega), \\ \zeta'(\mathbf{q}, \omega) &= \text{Re} \left[\int_0^\infty dt_1 \langle [j_s(\mathbf{q}, t_1), j_s(-\mathbf{q}, 0)] \rangle e^{i(\omega+i\delta)t_1} \right], \\ \zeta''(\mathbf{q}, \omega) &= \text{Im} \left[\int_0^\infty dt_1 \langle [j_s(\mathbf{q}, t_1), j_s(-\mathbf{q}, 0)] \rangle e^{i(\omega+i\delta)t_1} \right],\end{aligned}\quad (4.76)$$

と書くと [P は主値を示す]、

$$\text{Re}[\xi(\mathbf{q}, \omega)] = iq_x \left(\frac{\pi a_0 \langle \hat{T} \rangle}{N\Omega} - \frac{\pi\Omega}{N} \zeta''(\mathbf{q}, \omega) \right) \delta(\omega) + iq_x \frac{\pi\Omega}{N} \frac{\zeta'(\mathbf{q}, \omega)}{\omega}, \quad (4.77)$$

となる。

まず、式 (4.77) の $\zeta'(\mathbf{q}, \omega)$ の交換関係を展開すると、

$$\begin{aligned}\zeta'(\mathbf{q}, \omega) &= \text{Re} \left[\int_0^\infty dt_1 \langle j_s(\mathbf{q}, t_1) j_s(-\mathbf{q}, 0) \rangle e^{i(\omega+i0)t_1} \right] \\ &\quad - \text{Re} \left[\int_0^\infty dt_1 \langle j_s(-\mathbf{q}, 0) j_s(\mathbf{q}, t_1) \rangle e^{i(\omega+i0)t_1} \right],\end{aligned}\quad (4.78)$$

となる。さらに、完全性 $\sum_m |m\rangle \langle m| = 1$ より

$$\begin{aligned}\zeta'(\mathbf{q}, \omega) &= \text{Re} \left[\int_0^\infty dt_1 e^{i(\omega+i0)t_1} \sum_m \langle 0 | j_s(\mathbf{q}, t_1) | m \rangle \langle m | j_s(-\mathbf{q}, 0) | 0 \rangle \right] \\ &\quad - \text{Re} \left[\int_0^\infty dt_1 e^{i(\omega+i0)t_1} \sum_m \langle 0 | j_s(-\mathbf{q}, 0) | m \rangle \langle m | j_s(\mathbf{q}, t_1) | 0 \rangle \right],\end{aligned}\quad (4.79)$$

となる。ここで、 $|0\rangle$ は真空状態を指す。

さらに、

$$\begin{aligned}\langle 0 | j_s(\mathbf{q}, t_1) | m \rangle &= e^{-i(E_m - E_0)t_1} \sum_m \langle 0 | j_s(\mathbf{q}) | m \rangle, \\ \langle 0 | j_s(\mathbf{q}, 0) | m \rangle &= \langle 0 | j_s(\mathbf{q}) | m \rangle,\end{aligned}\quad (4.80)$$

から $[\hat{\mathcal{H}} |m\rangle = E_m |m\rangle$ を使った。 $\zeta'(\mathbf{q}, \omega)$ は

$$\begin{aligned}\zeta'(\mathbf{q}, \omega) &= \text{Re} \left[\int_0^\infty dt_1 e^{i(\omega - (E_m - E_0) + i0)t_1} \sum_m \langle 0 | j_s(\mathbf{q}) | m \rangle \langle m | j_s(-\mathbf{q}) | 0 \rangle \right] \\ &\quad - \text{Re} \left[\int_0^\infty dt_1 \sum_m e^{i(\omega + (E_m - E_0) + i0)t_1} \langle 0 | j_s(-\mathbf{q}) | m \rangle \langle m | j_s(\mathbf{q}) | 0 \rangle \right],\end{aligned}\quad (4.81)$$

となる。右辺の積分を実行すると、

$$\begin{aligned}\zeta'(\mathbf{q}, \omega) &= -\text{Re} \left[i \sum_m \frac{\langle 0 | j_s(\mathbf{q}) | m \rangle \langle m | j_s(-\mathbf{q}) | 0 \rangle}{\omega - (E_m - E_0) + i0} \right] \\ &\quad + \text{Re} \left[i \sum_m \frac{\langle 0 | j_s(-\mathbf{q}) | m \rangle \langle m | j_s(\mathbf{q}) | 0 \rangle}{\omega + (E_m - E_0) + i0} \right] \\ &= \pi \sum_m \langle 0 | j_s(\mathbf{q}) | m \rangle \langle m | j_s(-\mathbf{q}) | 0 \rangle \delta(\omega - (E_m - E_0)) \\ &\quad - \pi \sum_m \langle 0 | j_s(-\mathbf{q}) | m \rangle \langle m | j_s(\mathbf{q}) | 0 \rangle \delta(\omega + (E_m - E_0)),\end{aligned}\quad (4.82)$$

となる。したがって、Kramers-Kronig 関係式

$$\begin{aligned}\zeta'(\mathbf{q}, \omega) &= P \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega'}{\pi} \frac{\zeta(\mathbf{q}, \omega')}{\omega' - \omega}, \\ \zeta''(\mathbf{q}, \omega) &= -P \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega'}{\pi} \frac{\zeta'(\mathbf{q}, \omega')}{\omega' - \omega},\end{aligned}\quad (4.83)$$

より $\zeta'(\mathbf{q}, \omega)$ 、 $\zeta(\mathbf{q}, \omega)$ は、

$$\begin{aligned}\frac{\zeta'(\mathbf{q}, \omega)}{\omega} &= \frac{\pi\Omega}{N} \sum_m \frac{\langle 0 | j_s(\mathbf{q}) | m \rangle \langle m | j_s(-\mathbf{q}) | 0 \rangle}{\omega} \delta(\omega - (E_m - E_0)) \\ &\quad - \frac{\pi\Omega}{N} \sum_m \frac{\langle 0 | j_s(-\mathbf{q}) | m \rangle \langle m | j_s(\mathbf{q}) | 0 \rangle}{\omega} \delta(\omega + (E_m - E_0)), \\ \zeta''(\mathbf{q}, \omega' \rightarrow 0) &= P \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{\pi} \frac{\zeta'(\mathbf{q}, \omega)}{\omega},\end{aligned}\quad (4.84)$$

となる。

スピン伝導度 $\sigma_s(\omega)$ は、 $\mathcal{J}_s(\mathbf{q}, \omega)$ の長波長極限 $\mathcal{J}_s(\mathbf{q} \rightarrow 0, \omega)$ [以後任意 F について、 $F(\mathbf{q} \rightarrow 0, \omega) = F(\omega)$ と表示する] から、

$$\mathcal{J}_s(\omega) = \sigma_s(\omega) H(\omega) i q_x, \quad (4.85)$$

$$\sigma_s(\omega) = \text{Re}[\xi(\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{0}, \omega)], \quad (4.86)$$

となる。

さらに、以下のようにスピン伝導度 $\sigma_s(\omega)$ をその DC 成分 D_s (Drude の重み) と AC 成分 $\sigma_{s,\text{reg}}(\omega)$ に分解

$$\sigma_s(\omega) = D_s \delta(\omega) + \sigma_{s,\text{reg}}(\omega), \quad (4.87)$$

する。

このとき、絶対零度での AC 成分のスピン伝導度は

$$\sigma_{s,\text{reg}}(\omega) = \frac{\pi\Omega}{N} \sum_{E_m \neq E_0} |\langle m | j_s(\mathbf{q}) | 0 \rangle|^2 \frac{\delta(|\omega| - (E_m - E_0))}{E_m - E_0}, \quad (4.88)$$

となる [31]。

絶対零度におけるスピン伝導度の主要項は式 (4.88) に、 $j_{s\ 3/2\ i, i+\hat{x}}$ の Fourier 表示 $j_{s\ 3/2}(\mathbf{q})$ を Bogoliubov 変換したものを代入することで

$$\sigma_{s,\text{reg}}(\omega) = \frac{\pi\Omega}{N} \sum_{E_m \neq E_0} |\langle m | j_{s\ 3/2}(\mathbf{q}) | 0 \rangle|^2 \frac{\delta(|\omega| - (E_m - E_0))}{E_m - E_0}, \quad (4.89)$$

となる [27]。また、更に n の低次の成分の補正を加えることによって、高次の摂動計算を行うことができる。

ここで 2 次摂動を考える場合、式 (4.89) と同様にして $j_{s\ n/2\ i, i+\hat{x}}$ の Fourier 表示 $j_{s\ n/2}(\mathbf{q})$ の ($n = 2, 1$) を式 (4.88) に代入することで求められる。本修士論文後半では、非線形補正を含めたスピン伝導の計算結果を、ゼロ磁場下の結果のみ示す。また、このとき $n = 2$ の項はゼロ磁場下 ($\sin \theta = 0$) では消失するため、 $n = 1$ の Hartree-Fock 補正と励起スペクトルの量子補正 [式 (2.41)] を考慮することにより、非線形補正について計算することができる。

また、DC 成分のスピン伝導度は

$$D_s = \frac{\pi a_0}{N\Omega} \langle \hat{T} \rangle - I_{\text{reg}}, \quad (4.90)$$

$$I_{\text{reg}} = \int_{-\infty}^{\infty} \sigma_{s,\text{reg}}(\omega) d\omega, \quad (4.91)$$

となる。ここで、 $\hat{T}$ はスピン流の総和則（及び spin stiffness）と関係する量である。

4.7 総和則

本節では、前節の線形応答理論に基づいて計算したスピン伝導度に総和則が成立することを確認する [27]。この導出には電気伝導度の総和則 [31]、collinear 系におけるスピン伝導度の総和則 [22, 23] の先行研究を参考にした [27]。

4.7.1 総和則証明 1

ここでは、電気伝導の総和則 [31] の証明に沿って証明する [27]。

式 (4.88) よりスピン伝導度の総和は、

$$\begin{aligned} i q_x \frac{2N}{\pi} \int_0^{\infty} \sigma_s(\omega) d\omega &= \sum_m \frac{\langle 0 | j_s(\mathbf{q}) | m \rangle \langle m | i q_x j_s(-\mathbf{q}) | 0 \rangle}{E_m - E_0} \\ &\quad - \sum_m \frac{\langle 0 | i q_x j_s(-\mathbf{q}) | m \rangle \langle m | j_s(\mathbf{q}) | 0 \rangle}{-(E_m - E_0)}, \end{aligned} \quad (4.92)$$

となる。次に、連続方程式の Fourier 表示 [式 (4.70)] を使って上式を変形すると、

$$\begin{aligned} i q_x \frac{2N}{\pi} \int_0^{\infty} \sigma_s(\omega) d\omega &= \sum_m \frac{\langle 0 | j_s(\mathbf{q}) | m \rangle \langle m | \partial_t S^{z_0}(-\mathbf{q}) | 0 \rangle}{E_m - E_0} \\ &\quad - \sum_m \frac{\langle 0 | \partial_t S^{z_0}(-\mathbf{q}) | m \rangle \langle m | j_s(\mathbf{q}) | 0 \rangle}{-(E_m - E_0)}, \end{aligned} \quad (4.93)$$

となる。ここに Heisenberg 運動方程式の Fourier 表示

$$\partial_t S_i^{z_0}(\mathbf{q}) = i \left[\hat{H}, S_i^{z_0}(\mathbf{q}) \right], \quad (4.94)$$

を代入すると、式 (4.93) は

$$\begin{aligned} i q_x \frac{2N}{\pi} \int_0^{\infty} \sigma_s(\omega) d\omega &= \sum_m \frac{\langle 0 | j_s(\mathbf{q}) | m \rangle \langle m | (E_m - E_0) S_i^{z_0}(-\mathbf{q}) | 0 \rangle}{E_m - E_0} \\ &\quad - \sum_m \frac{\langle 0 | -(E_m - E_0) S_i^{z_0}(-\mathbf{q}) | m \rangle \langle m | j_s(\mathbf{q}) | 0 \rangle}{-(E_m - E_0)}, \\ &= \sum_m \langle 0 | j_s(\mathbf{q}) | m \rangle \langle m | S_i^{z_0}(-\mathbf{q}) | 0 \rangle \\ &\quad - \sum_m \langle 0 | S_i^{z_0}(-\mathbf{q}) | m \rangle \langle m | j_s(\mathbf{q}) | 0 \rangle \\ &= \langle 0 | j_s(\mathbf{q}) S_i^{z_0}(-\mathbf{q}) - S_i^{z_0}(-\mathbf{q}) j_s(\mathbf{q}) | 0 \rangle, \\ &= \langle 0 | i [j_s(\mathbf{q}), S^{z_0}(-\mathbf{q})] | 0 \rangle, \end{aligned} \quad (4.95)$$

となる。したがって、

$$2iq_x \int_0^\infty \sigma_s(\omega) d\omega = \frac{\pi}{N} \langle 0 | i [j_s(\mathbf{q}), S^{z_0}(-\mathbf{q})] | 0 \rangle, \quad (4.96)$$

となる [27]。

式 (4.73) より、この系に成立するべき総和則

$$2 \int_0^\infty \sigma_s(\omega) d\omega = \frac{\pi a_0}{N\Omega} \langle \hat{T} \rangle, \quad (4.97)$$

が導出できる [27]。またこの総和則の形は、collinear な系のスピン伝導度 [22, 23, 25] と良い対応ができている。また実験室系のスピン演算子による総和則の形式は、磁場中の正方格子反強磁性体に限らずあらゆる noncollinear 系にも適用可能な形式になっている。

さらに、 $\hat{T}$ は spin stiffness [式 (4.30)] のうち x -方向の成分の総和の $1/N$ と対応し、スピン流や電流の場合と同様にして spin stiffness と伝導度の総和の間に関係があることがわかる。また、交換相互作用が等方的な正方格子の場合、 x -成分 y -成分の総和が等しいため

$$\sum_l (\hat{T}_{l,l+\hat{x}} + \hat{T}_{l,l+\hat{y}}) = 2\hat{T}, \quad (4.98)$$

となることから、この $\hat{T}$ と spin stiffness は定数倍異なるがその磁場依存性が定性的に同じであることもわかる [27, 36]。

4.7.2 総和則証明 2

本小節では、総和則の証明を Kramers-Kronig 関係式から示す。また、この証明は Sentef の学位論文 [23] に基づいたものである。

スピン伝導度 $\sigma_s(\omega)$ を振動数積分すると、

$$\int_{-\infty}^\infty d\omega \sigma_s(\omega) = \left(\frac{\pi a_0 \langle \hat{T} \rangle}{N\Omega} - \frac{\pi\Omega}{N} \zeta''(\mathbf{q}, \omega \rightarrow 0) \right) + \text{P} \int_{-\infty}^\infty d\omega \frac{\pi\Omega}{N} \frac{\zeta'(\mathbf{q}, \omega)}{\omega}, \quad (4.99)$$

となる。また Kramers-Kronig 関係式 [式 (4.77)] から

$$\begin{aligned} \int_{-\infty}^\infty d\omega \sigma_s(\omega) &= \frac{\pi a_0 \langle \hat{T} \rangle}{N\Omega} - \frac{\pi\Omega}{N} \zeta''(\mathbf{q}, \omega \rightarrow 0) + \frac{\pi\Omega}{N} \zeta''(\mathbf{q}, \omega \rightarrow 0) \\ &= \frac{\pi a_0 \langle \hat{T} \rangle}{N\Omega}, \end{aligned} \quad (4.100)$$

となる。したがって、Kramers-Kronig 関係式より総和則が示された。

4.7.3 正方格子・三角格子の総和則

本小節では、具体的な格子系のスピン伝導度の振動数積分を議論する [27]。

簡単のため、式 (4.97) の左辺を I とし、Holstein-Primakoff 展開の S の n 次の項を I_n とおく。このとき I は

$$I = \sum_n I_n \quad n = 2, 1, 0, \dots, \quad (4.101)$$

となる。次に、 $\hat{T}_n$ を Holstein-Primakoff 展開 $\hat{T}$ の S^n 次の項とおくと、

$$\langle \hat{T} \rangle = \sum_n \langle \hat{T}_n \rangle \quad n = 2, 1, 0, \dots, \quad (4.102)$$

となる。ここで、実際には $\hat{T}_{n/2}$ (n は奇数) の項も存在する。しかし $\langle \hat{T}_{n/2} \rangle$ (n は奇数) はゼロであるため、無視できる。 $\hat{T}_n$ によって、 I_n は

$$I_n = \frac{\pi a_0}{N\Omega} \langle -\hat{T}_n \rangle \quad n = 2, 1, 0, \dots, \quad (4.103)$$

となる。したがって、式 (4.103) を使って I_n を計算することができる。

正方格子反強磁性体について I_n を考える。式 (4.73) で示された $\hat{T}$ について、スピン演算子に量子化軸の回転 [式 (2.3)] をする。すると $\hat{T}$ は、

$$\begin{aligned} \hat{T} &= J \sum_i (S_i^{x_0} S_{i+\hat{x}}^{x_0} + S_i^{y_0} S_{i+\hat{x}}^{y_0}) \\ &= J \sum_i [\sin^2 \theta S_i^x S_{i+\hat{x}}^x - \cos^2 \theta S_i^z S_{i+\hat{x}}^z + S_i^y S_{i+\hat{x}}^y] \\ &\quad + J \sum_i e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_i} \sin \theta \cos \theta (S_i^z S_{i+\hat{x}}^x - S_i^x S_{i+\hat{x}}^z), \end{aligned} \quad (4.104)$$

となる。ここに、Holstein-Primakoff 展開をすると、

$$\begin{aligned} \hat{T} &= \frac{SJ}{2} \sum_i (\sin^2 \theta + 1) (a_i^\dagger f(n_i) f(n_{i+\hat{x}}) a_{i+\hat{x}} + a_{i+\hat{x}}^\dagger f(n_{i+\hat{x}}) f(n_i) a_i) \\ &\quad + \frac{SJ}{2} \sum_i (\sin^2 \theta - 1) (a_i^\dagger f(n_i) a_{i+\hat{x}}^\dagger i f(n_{i+\hat{x}}) + f(n_i) a_i f(n_{i+\hat{x}}) a_{i+\hat{x}}) \\ &\quad - J \sum_i \cos^2 \theta (S - n_i)(S - n_{i+\hat{x}}) \\ &\quad + \sqrt{\frac{SJ}{2}} \sum_i e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_i} \sin \theta \cos \theta [(S - n_i) f(n_{i+\hat{x}}) a_{i+\hat{x}} - f(n_i) a_i (S - n_{i+\hat{x}})] \\ &\quad + \sqrt{\frac{SJ}{2}} \sum_i e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_i} \sin \theta \cos \theta [(S - n_i) a_{i+\hat{x}}^\dagger f(n_{i+\hat{x}}) - a_i^\dagger f(n_i) (S - n_{i+\hat{x}})], \end{aligned} \quad (4.105)$$

となる。

この式 (4.105) について、 S^2 、 S^1 次の項が $\hat{T}_2$ 、 $\hat{T}_1$ である。したがって、 $\hat{T}_2$ は式 (4.105) の主要項から、

$$\hat{T}_2 = -NJS^2 \cos^2 \theta, \quad (4.106)$$

となり、 $\hat{T}_1$ は、

$$\begin{aligned} \hat{T}_1 &= 2JS \cos^2 \theta \sum_l n_l - NJS^2 (\cos^2 \theta' - \cos^2 \theta) \\ &\quad + \frac{JS}{2} \sum_l (\sin^2 \theta + 1) (a_l^\dagger a_{l+\hat{x}} + a_{l+\hat{x}}^\dagger a_l) \\ &\quad + \frac{JS}{2} \sum_l (\sin^2 \theta - 1) (a_l^\dagger a_{l+\hat{x}}^\dagger + a_l a_{l+\hat{x}}), \end{aligned} \quad (4.107)$$

となる。ここで、 T_1 の θ' は式 (2.33) で導出した量子補正を考慮した canting angle である。

ここで、比較のために三角格子反強磁性体の $\hat{T}_n$ について、正方格子と同様にして導出する。まず、 $\hat{T}$ に実験室系から回転座標系へと量子化軸の回転

$$\begin{aligned}\hat{T} &= J \sum_i (S_i^{x_0} S_{i+\hat{x}}^{x_0} + S_i^{y_0} S_{i+\hat{x}}^{y_0}) \\ &= J \sum_i [S_i^y S_{i+\hat{x}}^y + \cos \theta_i \cos \theta_{i+\hat{x}} S_i^x S_{i+\hat{x}}^x + \sin \theta_i \sin \theta_{i+\hat{x}} S_i^z S_{i+\hat{x}}^z] \\ &\quad + J \sum_i [\sin \theta_i \cos \theta_{i+\hat{x}} S_i^z S_{i+\hat{x}}^x + \cos \theta_i \sin \theta_{i+\hat{x}} S_i^x S_{i+\hat{x}}^z],\end{aligned}\quad (4.108)$$

をする。ここに更に Holstein-Primakoff 展開をすると

$$\begin{aligned}\hat{T} &= \sum_i \frac{JS(\cos \theta_i \cos \theta_{i+\hat{x}} + 1)(a_i^\dagger f(n_i) f(n_{i+\hat{x}}) a_{i+\hat{x}} + \text{H.c.})}{2} \\ &\quad + \sum_i \frac{JS(\cos \theta_i \cos \theta_{i+\hat{x}} - 1)(a_i^\dagger f(n_i) a_{i+\hat{x}}^\dagger i f(n_{i+\hat{x}}) + \text{H.c.})}{2} \\ &\quad + \sqrt{\frac{S}{2}} \sum_i \sin \theta_i \cos \theta_{i+\hat{x}} (S - n_i)(a_{i+\hat{x}}^\dagger f(n_{i+\hat{x}}) + f(n_{i+\hat{x}}) a_{i+\hat{x}}) \\ &\quad + \sqrt{\frac{S}{2}} \sum_i \cos \theta_i \sin \theta_{i+\hat{x}} (a_i^\dagger f(n_i) + f(n_i) a_i)(S - n_{i+\hat{x}}),\end{aligned}\quad (4.109)$$

となる。

正方格子同様にして、三角格子の場合、式 (4.109) を S^2 、 S^1 次までとると $\hat{T}_2$ 、 $\hat{T}_1$ が求まる。したがって、 $\hat{T}_2$ は、

$$\hat{T}_2 = JS^2 \sum_l \sin \theta_{l+\hat{x}} \sin \theta_l, \quad (4.110)$$

となり、 $\hat{T}_1$ は、

$$\begin{aligned}\hat{T}_1 &= \frac{JS}{2} \sum_l \left(\frac{\cos^2 \theta - 2 \cos \theta}{3} - 1 \right) (a_l^\dagger a_{l+\hat{x}}^\dagger + a_l a_{l+\hat{x}}) \\ &\quad + \frac{JS}{2} \sum_l \left(\frac{\cos^2 \theta - 2 \cos \theta}{3} + 1 \right) (a_l^\dagger a_{l+\hat{x}} + a_{l+\hat{x}}^\dagger a_l) \\ &\quad - NJS^2 \left(\frac{\sin^2 \theta' - \sin^2 \theta}{3} \right) + JS \frac{2 \sin^2 \theta}{3} \sum_l n_l,\end{aligned}\quad (4.111)$$

となる。

この三角格子反強磁性体の計算は、磁場下のそれぞれ揺らぎ方の異なる3つ副格子について、その揺らぎの様子を同一視してしまっているため、量子揺らぎを幾ばくか誤って取り込んでいる可能性がある。このため節4.4で言及したように、磁場下の三角格子のような副格子ごとに揺らぎ方が異なる磁性体には、この3副格子を同一視する操作より3種類のボソンを別々に議論するほうが望ましい。量子揺らぎを正しく取り込むためには、 $\hat{T}_1$ について異なる副格子に異なる Holstein-Primakoff ボソンを導入し、3種類のボソンによって記述すること必要がある。[補足：正方格子反強磁性体は2つの副格子の揺らぎ方が磁場下でも同一視できるため、このような問題は生じない。三角格子に関してもゼロ磁場下では3つの副格子の揺らぎは同一視できるため、この操作が正当化できる。しかし、3副格子の揺らぎを同一視した式 (4.111) は、磁場が強くなるほどその揺ら

ぎの取り込み方の誤って取り込んでしまう。これは磁場が強くなるにつれて、スピンの揺らぎの様子が同一視できなくなるためである。]

また Holstein-Primakoff 展開前の式 (4.97) に示した実験室系のスピン演算子で表示した総和則は、格子の形状に関わらず磁化が保存する系である限り使うことができる [上記の問題は、Holstein-Primakoff 変換で、それぞれの3つのスピン演算子を同一視したために生じたため、変換前であればこの表式は正しい]。またこの副格子の揺らぎの取扱いを正しくすることで、三角格子・カゴメ格子など様々な格子においても、より良い計算結果を得ることができる。

4.8 結果・考察

本節では $S = 1/2$ 正方格子 Heisenberg 反強磁性体に焦点をおき、スピン伝導度とその総和則を示す [27]。

正方格子の I_{reg} の主要項を $I_{\text{reg } 2}$ と書き、スピン伝導度の総和 I_2 と $I_{\text{reg } 2}$ の磁場 h ($0 \leq h \leq 1$) 依存性を図 4.6(a) に示す [27]。この2つの物理量 I_2 、 $I_{\text{reg } 2}$ は、あらゆる磁場領域において完全に重なるため、意図的に I_2 を僅かにずらしている。式 (4.91) より、スピン伝導度の総和の主要項 I_2 と $I_{\text{reg } 2}$ の差から Drude の重みが求まることがわかる。したがって I_2 と $I_{\text{reg } 2}$ が一致することは、総和則が AC 成分で飽和しており、Drude の重みがゼロであることを示している。スピンの Drude の重みが絶対零度においてゼロであることは、他の2次元反強磁性体のスピン伝導度の計算 [22, 40, 41] と consistent である。

ここで一般には、流れ演算子 J と Hamiltonian H が交換する $[J, H] = 0$ 場合、Drude の重みは正になる。一方 $[J, H] \neq 0$ 場合、一般には Drude の重みはゼロである [28, 30, 42]。ここで、スピン流密度演算子と Heisenberg Hamiltonian の交換関係は、 $[j_{s, i, i+\hat{x}}, H] \neq 0$ であるため、正方格子反強磁性体において Drude の重みがゼロであることは尤もであると考えている。

ここで式 (4.89) から、スピン伝導の AC 成分の総和 $I_{\text{reg } 2}$ を計算した。さらに、 I_2 を式 (4.105) によって求めた。

次にスピン伝導度の総和の主要項 I_2 と非線形補正を含む項 $I_2 + I_1$ を図 4.6(b) に示す [27]。この図から、 I_2 が磁場増大につれて単調に増大するのに対して $I_2 + I_1$ は非単調にふるまっていることがわかる [27]。この結果は、スピン伝導の総和を決める低磁場、高磁場でそれぞれ支配的な2つの効果 1.、2. によって生じる。

1. 絶対零度における $S = 1/2$ の正方格子反強磁性体の副格子磁化の大きさ M_s

$$M_s = \left\langle \frac{1}{N} \sum_i S_i^z \right\rangle = \frac{1}{N} \left\langle \sum_i (S - n_i) \right\rangle = S - n \quad (4.112)$$

を、図 4.7 に示す。この図から、ゼロ磁場では M_s は古典的スピンの長さ $S = 1/2$ と比べて 40% 程度縮んでいることがわかる。これは量子揺らぎによるものである。また、磁場増大につれて M_s は単調に増大する。

式 (2.18) や図 2.2 から、ゼロ磁場下で Γ 点に存在したギャップレスな Goldstone mode は磁場増大につれて磁場と同じ大きさのエネルギーギャップを持つようになることを紹介した。この Γ 点でのエネルギーギャップが増大するにつれ、この副格子磁化が抑制される要因である量子揺らぎは弱くなる。したがって、 M_s は磁場の増大について単調に増加する。

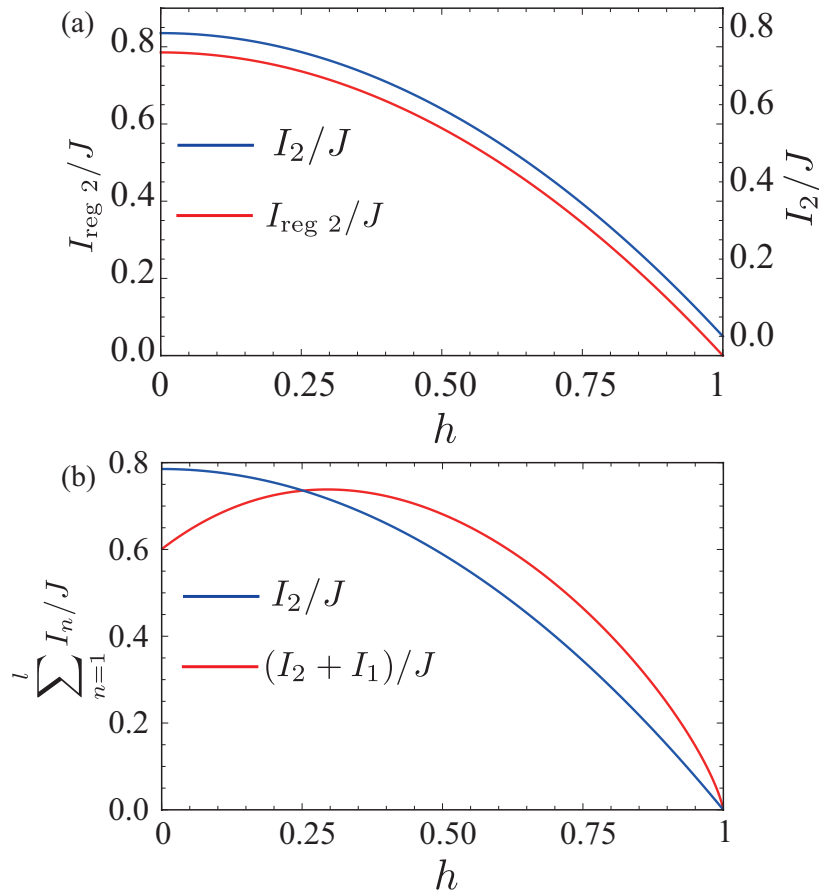


図 4.6 (a) $S = 1/2$ 正方格子反強磁性体のスピン伝導度の総和の主要項 I_2 と、AC 成分の主要項 $I_{\text{reg } 2}$ を示す (参考文献 Y. Kubo and S. Kurihara, JPSJ (2013)[27] 図 1 より、引用)。これらはあらゆる磁場領域で完全に一致する。そのため、わずかに I_2 をずらして示している。また、この二つの物理量の差が Drude の重みを決める。そのため、この一致はあらゆる磁場領域でスピン伝導度の DC 成分がゼロであることを意味する。(b) スピン伝導度の総和の主要項 I_2 と $1/S$ 補正を含んだ項 $I_2 + I_1$ を示す (参考文献 Y. Kubo and S. Kurihara, JPSJ (2013)[27] 図 1 より、引用)。この図から、主要項は磁場の単調減少関数になる一方、 $1/S$ 補正を含んだ項は磁場変化に対して非単調に振る舞う。

以上の M_s の変化の議論により、伝導を担うスピンの有効的な長さ $[M_s]$ が、低磁場側では量子揺らぎによって古典解と比べて短くなっていることがわかる。このため低磁場側では、量子揺らぎを考慮したスピン伝導度の総和 $I_2 + I_1$ は、古典的な主要項 I_2 に比べて抑制される。このスピン伝導度の総和を抑制する効果は磁場増大につれて弱くなる。したがって、低磁場側で $I_2 + I_1$ は磁場の増加関数となる。この効果はゼロ点振動に由来するため、量子揺らぎを反映する $I_2 + I_1$ を抑制する。一方で、古典的な解である I_2 には影響しない。

2. スピンの canting angle θ は磁場増大につれて増大し、やがて飽和磁場では磁場と平行に配列する。磁場増大につれ、スピンは磁場方向により強く固定されるため、量子揺らぎが小さくなる。したがって、スピン伝導度の総和は磁場増大につれて抑制される。さらに、飽和磁場に達するとスピン磁場方向に完全に固定される。このときスピン伝導度の総和はゼロ、すなわちスピン伝導度はあらゆる振動数についてゼロになる。

以上よりスピン伝導度の総和は、2つの効果[1. 量子ゆらぎによる抑制が低磁場側では強いが、磁場増大に

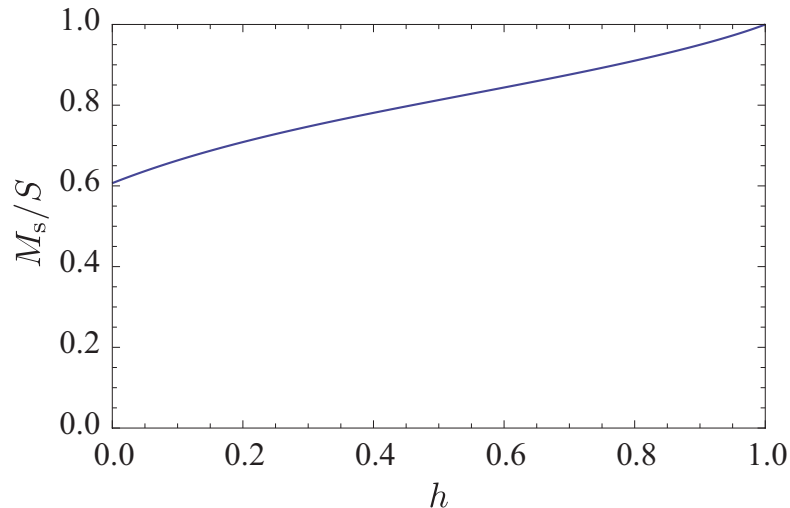


図 4.7 $S = 1/2$ における M_s の磁場依存性を示す。ゼロ磁場ではこの M_s が量子揺らぎによって 40% 程度縮んでいることがわかる。また磁場増大につれて Γ 点の揺らぎが抑制されるため、 M_s は大きくなる。この副格子磁化の回復によってスピン伝導度の総和は、低磁場領域で h 増大につれて増大する。

つれてその効果が弱まる、2. 磁場方向にスピンを固定することによるスピン伝導度の抑制が磁場増大につれて大きくなる] によって定性的な振る舞いが決まる。ここで I_2 は、2. のみによって決まるためにスピン伝導度の総和は単調に減少する。一方、 $I_2 + I_1$ の非単調な振る舞いは 1. と 2. の競合によって生じ、 $h \approx 0.25$ 近傍でピークを生じる。

さらに、スピン伝導度の総和は spin stiffness に定数倍した量と等しくなる [36]。実際に、磁場下正方格子反強磁性体の spin stiffness の量子モンテカルロ法、厳密対角化、スピン波理論 [36] の計算結果と、本研究のスピン伝導度の総和 [27](図 4.6(b)) の振る舞いは consistent である。また先行研究も、spin stiffness の非単調な振る舞いについて同様の解釈をしている [36]。

次に $S = 1/2$ 正方格子のスピン伝導と、比較のため三角格子のスピン伝導の各磁場下の計算結果を示す。正方格子の主要成分のスピン伝導を図 4.8(a) に、三角格子でのスピン伝導を図 4.8(b) に示す。[またこれは、式 (4.89) より導出した。]

まず正方格子に注目する。線形スピン波スペクトルのバンド幅 [磁氣的 Brillouin ゾーンの端の励起エネルギー] は $4JS$ 、 Γ 点の励起エネルギーは $8JSh$ である [式 (2.18)]。ここで、低磁場 ($h < 0.5$) に注目すると、 Γ 点のエネルギーギャップが低振動数側、バンド幅が高振動数側のスピン伝導の閾値になっていることがわかる。また十分に高磁場側 ($h > 0.5$) については、磁氣的 Brillouin ゾーンの端が低振動数側の閾値・ Γ 点の励起エネルギーが高振動数側の閾値になる。したがって、その低振動数・高振動数側の閾値を決める波数が低磁場側と高磁場側で逆転していることがわかる。

この閾値を決める波数の変化は、スペクトルの形状が変わったことにより生じる。ここで低磁場側で磁氣的 Brillouin ゾーンの最低エネルギーは Γ 点、最高エネルギーは磁氣的 Brillouin ゾーンの端が決める。一方で、この最低・最高エネルギーが低磁場側と高磁場側は逆転する [式 (2.18)、図 2.2]。したがって、励起スペクトルの形状がスピン伝導度の概形を決めていることがわかる。また $\omega/J \approx 4JS$ のスピン伝導度の発散は、状態密度が発散しているために生じる van-Hove の特異性から生じている。この特異性は、量子補正を考慮すること

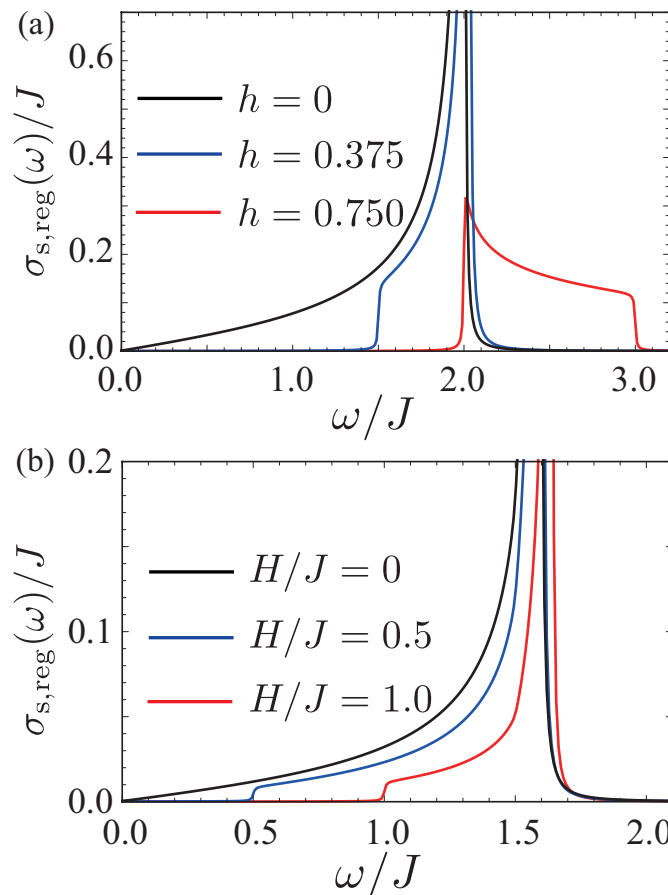


図 4.8 (a) $S = 1/2$ 磁場下正方格子反強磁性体の絶対零度のスピン伝導度の主要項 (参考文献 Y. Kubo and S. Kurihara, JPSJ (2013)[27] 図 2 より、引用)。この振動数の閾値は磁氣的 Brillouin ゾーンの励起スペクトルの最大値・最小値が決める。また、 $\omega/J = 2$ 付近の伝導度の発散は van-Hove の特異性による。(b) $S = 1/2$ 磁場下三角格子反強磁性体の絶対零度のスピン伝導度 (参考文献 Y. Kubo and S. Kurihara, JPSJ (2013)[27] 図 2 より、引用)。正方格子と同様にして、振動数の閾値は磁氣的 Brillouin ゾーンの励起スペクトルの最大値・最小値が決め、van-Hove の特異性が確認できる。

によって弱まることが期待できる。

$S = 1/2$ 三角格子 Heisenberg 反強磁性体に関しても、同様にして励起スペクトルの最低 (最高) エネルギーがスピン伝導度の低振動数 (高振動数) 側の閾値を決めることが図 4.8(b) からわかる。ここで前述の通り、等価とみなすべきではない 3 副格子を同一視する方法によって簡単化し、スピン伝導度を調べたものである。このため、高磁場側での適用は十分な信頼はおけない。しかし正方格子での議論と同様にして、励起スペクトルの磁氣的 Brillouin ゾーンの内様子がスピン伝導を決めるため、本結果は近似の誤差を含むものの、大まかな様子としては変化しないと考えられる。しかし今後、このような多重副格子系では n 個の副格子のスピンを別々の Holstein-Primakoff ボソンで書き計算するべきである。

次にゼロ磁場下正方格子反強磁性体の、非線形補正を含んだスピン伝導度の計算結果を図 4.9 に示す。また比較のため、線形スピン波近似計算の結果も示す。ここから、スピン伝導度が量子補正によって二つの定量的変化をしていることがわかる。

1. van-Hove 特異性の位置が高振動数側に移動する。

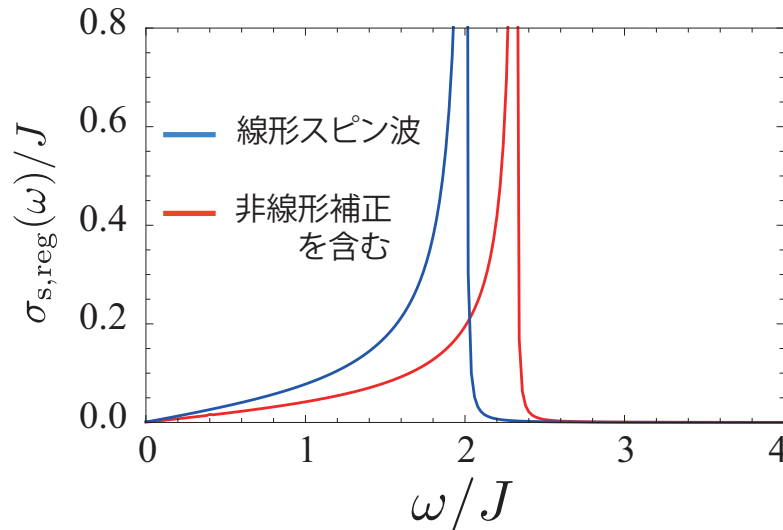


図 4.9 ゼロ磁場下の $S = 1/2$ 正方格子反強磁性体のスピン伝導度の線形スピン波理論範囲内と、非線形補正を含む計算結果を示す。非線形項の考慮によって van-Hove 特異性が高振動数側にずれていることがわかる。これは、ゼロ磁場において励起スペクトルがその量子効果によってハード化することによる。また量子補正によって、伝導度が低下していることがわかる。これは M_s がゼロ点振動によって縮んでいることにより、伝導が抑制されたことによる。

2. スピン伝導度が抑制される。

ここでは、上記の 1. 2. の結果について、その考察を行う。

1. 非線形補正によってスピン波スペクトルは、線形スピン波スペクトルに対して波数依存性なしに 20% 程度ハード化する [式 (2.41)]。このようにスペクトルが非線形補正によって変化することにより、スピン伝導度が高振動数側に移動する。
2. スピン伝導度の総和が低磁場側で抑制される理由と同様に、ゼロ磁場では副格子磁化が量子揺らぎのために抑制されている。このためスピン伝導度は抑制される。

また、ゼロ磁場下では $j_{s, i, i+\hat{x} 1}$ が消失している [式 (4.40) 参照] ため、伝導に寄与するのは $j_{s, i, i+\hat{x} 3/2}$ と、 $j_{s, i, i+\hat{x} 1/2}$ からの Hartee-Fock 補正のみである。したがって量子補正後も主要項と同様にして、中間状態として存在するのは 1 マグノン中間状態のみである。したがって、定性的な伝導の様子としては線形スピン波理論の結果と相違ない。

ゼロ磁場下のスピン伝導度が量子補正によって定性的な変化を受けないことについて、次のように解釈することができる。本論文前半で議論したように、3 マグノン相互作用が禁止される [4] ことにより、ゼロ磁場下ではマグノン間相互作用が比較的小さい。非線形相互作用が小さい下では、線形スピン波近似が良い近似になるべきである。したがってスピン伝導度に関しても、量子補正は定性的に大きな変化を与えない。

ここで、有限磁場下では $j_{s, i, i+\hat{x} 1}$ が有限になる。したがって有限磁場下では、非線形補正を考慮したスピン伝導度は 2 マグノンの中間状態を持ちうる。さらに、高磁場下では 3 マグノン相互作用が強くなり、線形スピン波近似からの励起スペクトルの逸脱が大きくなることを示した。現段階では磁場下様子は調べることができていないが、2 マグノン中間状態の出現や 3 マグノン相互作用の増大によって、スピン伝導度に興味深い

結果が得られると考えている。また高磁場下で出現するロトンの伝導への寄与についても、今後は調べていきたいと考えている。

4.9 スピン伝導度・まとめ

本章では、磁場下の noncollinear な構造を持つ正方格子 Heisenberg 反強磁性体に焦点を当て、そのスピン伝導度を調べた [27]。

近年、スピン・熱の輸送特性が実験的に明らかになりつつあり [20]、その理論研究の発展にはスピン流密度演算子の定義をすることが不可欠である。そこで、磁化 (磁場方向成分) の保存則からスピン流密度演算子を定義している先行研究に注目した [22, 23]。この研究 [22, 23] では、スピンの量子化軸と磁場が共線上にある系に着目し、スピン流密度演算子を定義している。さらに、この定義を用いて計算したスピン伝導度の振動数積分が、総和則を満たすことが示されている。このことから、比較的信頼のおけるスピン流密度演算子の定義であると考えた。

本研究では、スピン流密度演算子の定義 [22, 23] を参考に、スピンの量子化軸と磁場が共線上にない noncollinear な反強磁性体に適用可能なスピン流密度演算子の定義を試みた。定義にあたり、磁化 (磁場方向成分) の保存則について、粗視化した連続方程式を用いた。この結果、noncollinear 系のスピン流密度演算子や総和則の形式は、1次元や Ising 異方性を持つ2次元反強磁性体と同様な形式にまとまった。

さらに、見出したスピン流密度演算子を用いて、絶対零度におけるスピン伝導度を線形応答理論に基づいて計算した。スピン伝導度の総和を調べたところ、その主要項 I_2 と $1/S$ 補正を含んだ項 $I_2 + I_1$ には、スピン伝導の総和を抑制する2つの効果

1. 量子揺らぎによってスピンが縮むために伝導を抑制する効果。
 - 量子効果のため $I_2 + I_1$ のみに寄与し、低磁場側ほど、その効果が強い。
2. 磁場方向にスピンを固定することによりスピンの伝導を抑制する効果
 - 主要項 I_2 の全磁場領域を決める。量子補正を含む $I_2 + I_1$ は、高磁場側ほどその効果が強い。

が働くことがわかった。したがって、 I_2 は2. の効果により磁場の増大に対して単調に減少するが、 $I_2 + I_1$ は低磁場・高磁場側で伝導を抑制する2つの効果の競合によって非単調に舞う。

本研究ではこのスピン流密度演算子・スピン伝導度の総和を2つの方法

1. 磁化保存則よりスピン流密度演算子を定義し、線形応答理論からそのスピン伝導度の総和を導出
2. 隣同士の局所スピンの ψ の位相 (磁場方向に垂直) のねじれを生じさせた場合の Hamiltonian の ψ の1次 [スピン流密度演算子と関係]・2次の係数 [spin stiffness・総和則と関係] を導出

し、その間に関係があることを示した。また I_2 や $I_2 + I_1$ が、先行研究の spin stiffness の計算結果 [36] と consistent であることを確認した。上記のように、2つの方法によって導いた流れの演算子・総和則の関係は、電気伝導度や collinear 系におけるスピン伝導等においても指摘されている [23, 28–31]。本研究で導出した noncollinear 系のスピン伝導にも、先行研究と同様の関係が成立したことはこのスピン伝導度の計算の正当性を示唆していると考えている。

また、有限磁場下の AC・DC スピン伝導度は主要成分のみ計算を行った。AC 成分のスピン伝導度の総和 $I_{\text{reg } 2}$ と、スピン伝導度の総和 I_2 の比較から Drude の重みを計算した [式 (4.91) 参照]。その結果、2つの総和はあらゆる磁場領域で完全に一致し、AC 成分のみで総和則が飽和していることがわかった。したがって絶対零度における Drude の重みは、あらゆる磁場領域でゼロであることが明らかになった。これは先行研究 [22, 40, 41] と consistent である。

次に AC 成分のスピン伝導度を計算した。ここで、比較のために正方格子のみならず三角格子 Heisenberg 反強磁性体のスピン伝導を調べた。この結果、励起スペクトルの最大値 (最小値) がそのスピン伝導度の低振動数 (高振動数) の閾値を決め、van-Hove 特異性が出現することがわかった。したがって AC スピン伝導度の主要項の振る舞いは、励起スペクトルによって決まることがわかった。

また、非線形補正を考慮したゼロ磁場下のスピン伝導度を計算した。ここから、量子効果によってスペクトルがハード化することにより、van-Hove 特異性が出現する振動数が高振動数側にずれることを確認した。さらに、AC スピン伝導度はスピン伝導度の総和と同様にして、量子補正によって抑制されることがわかった。またゼロ磁場下では、非線形補正によってその伝導に僅かな補正を与えるが、定性的には線形スピン波計算と同じ結果を得た。これは、3 マグノン相互作用がゼロ磁場下で禁止されていることにより、マグノン間相互作用が弱いために線形スピン波計算が良い近似になっているためである。

有限磁場下のスピン伝導度を、非線形効果を考慮して調べることは今後の研究課題である。本論文で示した、線形スピン波理論による磁場下のスピン伝導度の計算は、3 マグノン相互作用の効果は無視している。したがって、3 章に記述したロトンや、強い 3 マグノン相互作用のスピン伝導度への寄与は明らかにできていない。したがって今後は、マグノンの非線形相互作用に焦点を当て、スピンによる輸送特性について研究を進めていきたい。

最後に、このスピン流密度演算子は磁化保存系である限り $S \geq 1/2$ のいかなるスピンや格子系についても適用できるものと考えている。このスピン流密度演算子の定義が、noncollinear 系におけるスピン伝導等の研究の更なる発展に、幾ばくかの寄与となることを期待している。

第 5 章

まとめ

本研究では、磁場中で noncollinear な構造をとる正方格子 Heisenberg 反強磁性体に焦点を当て、絶対零度における非線形スピン波スペクトル [33] とスピン伝導度 [27] を調べた。正方格子反強磁性体が、ゼロ磁場で collinear、有限磁場下で noncollinear な構造をとることに注目し、noncollinear な構造を取る場合に誘起される 3 マグノン相互作用に注目した [4-6]。またこの相互作用の強さは、そのスピンの構造に依存するため、ゼロから十分大きな値まで磁場によって連続的に変化させることができる。このような相互作用の制御性は、物性物理学においても極めて稀といえる。したがって、正方格子 Heisenberg 反強磁性体は、相互作用の効果を調べる上で非常に貴重な物質系といえる。

相互作用が十分に強くなったとき、2 次摂動計算の有効性が失われるとして、SCBA を施してその励起スペクトルなどを調べた先行研究がある。しかし、SCBA は保存則を破る近似であるため、その結果には十分な信頼がおけない [5,6]。したがって、Mourigal-Zhitmirsky らの非線形スピン波計算の方法 [5,6] に基づいて、保存則を満たす 2 次摂動の範囲内で非線形スペクトルを詳細に調べた [5,6]。

この結果 $h \approx 0.75$ の狭い磁場領域で M 点付近の励起スペクトルに、わずかな磁場変化に対して敏感に応答する、ロトンのような極小を生じることがわかった。このロトンの波数やエネルギーギャップなど、その詳細を調べたところ、

1. 3 マグノン相互作用が M 点付近で最も強くなり、ロトンが出現して急峻にソフト化すること
2. 波数空間について非常に鋭い構造を形成すること

がわかった。このエネルギーギャップがゼロになる磁場で、cant した基底状態から新しい基底状態への量子相転移が起これと考えている。その新しい基底状態の詳細をこの研究のみから決定することはできないが、3 マグノン相互作用が強くなることによって、この相転移が生じたと考えている。また鋭い構造の出現は、実験や数値計算によって観測された線幅の増大 [10, 34, 35] の要因の一つとなっていると考えている。

また、有機化合物などでは飽和磁場が 10T 程度の理想的な 2 次元正方格子 Heisenberg 反強磁性体が合成されている [9,13]。さらに、実験的にも 10T 程度の磁場下で実験を行うことが比較的容易になっており、中性子散乱や比熱測定によってこのロトンを観測できる可能性がある。

また非線形スペクトルの計算によって、磁場下では P 点の励起エネルギーが X' 点それと比べて低くなることがわかった。これは、磁場下では P 点の非線形補正が X' 点のそれと比べて強くなることによって生じ、先行研究の計算結果 [6, 34] と consistent である。この 2 つの点の励起スペクトルは、中性子散乱実験によっ

て調べられており [9]、この実験結果とも consistent な結果である。

以上より、3 マグノン相互作用が誘起された磁場中では線形スピン波近似が良い近似ではなくなることを示した。さらに、1 マグノン状態と2 マグノン状態の強い混合によって、ロトンが出現・ソフト化し、量子相転移することを示した。今後はロトンのソフト化をヒントに、3 マグノン相互作用に着目して高磁場下の新しい秩序状態の決定を試みる予定である。

本論文前半では noncollinear な構造を持つ系は、3 マグノン相互作用によって励起スペクトルが強く影響を受けることがわかった。この励起スペクトルの変化は、比熱など様々な物理量に影響を及ぼすと考えられる。

序章で述べたように、熱・スピンの輸送の応用への期待が近年高まっている。反強磁性体におけるそれらの輸送特性の理論は、1 次元スピン系などでは精力的に調べられている [24, 25, 39]。一方、2 次元系では collinear 系、noncollinear 系ともに先行研究が少ない [22]。したがって、正方格子反強磁性体のゼロ磁場・有限磁場下の輸送特性を調べることは、collinear 系、noncollinear 系の双方の輸送特性を調べる上で重要であると考えている。さらに noncollinear 系では、3 マグノン相互作用が存在するため、熱・スピン輸送と強い非線形効果を明らかにすることは重要である。

本研究では noncollinear 系の輸送特性を調べるために、スピン流密度演算子の定義を見出した。この定義の正当性を、磁場とスピンが共線上にある系や電流と同様に、総和則が成立することから示した [27]。このスピン伝導度の総和は spin stiffness と関係し、共通する磁場依存性を持つことがわかった [34, 36]。これらは見出したスピン流密度演算子の定義の正当性を意味しており、定義を見出すことで noncollinear 系のスピン輸送の研究を可能にした。この定義を用い、スピン伝導度の主要項を詳細に調べた。さらに、非線形補正を考慮したスピン伝導度については、3 マグノン相互作用が禁止されるゼロ磁場下正方格子反強磁性体のみ調べた。

今後は、磁場中正方格子のスピン伝導度と3 マグノン相互作用を詳細に調べる。この研究にあたり、3 章で明らかにしたロトンの出現とソフト化や量子相転移に着目し、それらの輸送特性への影響を明らかにする。また noncollinear 系の輸送特性について、スピン伝導度に留まらず、スピン流と熱流の結合による磁気熱効果 [24, 25, 39] 等についても、明らかにしたい。

最後に、この研究が磁場下の励起スペクトルの理論・実験両面の研究や、今まで研究が十分になされなかった noncollinear 系のスピン伝導の研究を刺激し、その発展に結び付くことを期待している。

謝辞

本研究を進めるにあたり、栗原進先生とたくさん議論して有益な助言をたくさん戴きました。研究室の仲間とは、セミナーなどでの議論から、自分自身の理解や、研究内容を更に深めることができたと思います。また本研究は、文部科学省卓越した大学院拠点形成支援補助金を受けたものです。

この研究を支えて下さった栗原先生をはじめとする様々な方々に、深く御礼申し上げます。

参考文献

- [1] 久保健, 田中秀数: 磁性 I(朝倉物性物理シリーズ), 朝倉書店 (2008).
- [2] Coldea, R., Hayden, S. M., Aeppli, G., Perring, T. G., Frost, C. D., Mason, T. E., Cheong, S.-W. and Fisk, Z.: Spin Waves and Electronic Interactions in La_2CuO_4 , *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 86, pp. 5377–5380 (2001).
- [3] Syromyatnikov, A. V.: Spectrum of short-wavelength magnons in a two-dimensional quantum Heisenberg antiferromagnet on a square lattice: third-order expansion in $1/S$, *J Phys : Condens Matter*, Vol. 22, No. 21, p. 216003 (2010).
- [4] Zhitomirsky, M. E. and Chernyshev, A. L.: *Colloquium* : Spontaneous magnon decays, *Rev. Mod. Phys.*, Vol. 85, pp. 219–242 (2013).
- [5] Zhitomirsky, M. E. and Chernyshev, A. L.: Instability of Antiferromagnetic Magnons in Strong Fields, *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 82, pp. 4536–4539 (1999).
- [6] Mourigal, M., Zhitomirsky, M. E. and Chernyshev, A. L.: Field-induced decay dynamics in square-lattice antiferromagnets, *Phys. Rev. B*, Vol. 82, p. 144402 (2010).
- [7] Chernyshev, A. L. and Zhitomirsky, M. E.: Spin waves in a triangular lattice antiferromagnet: Decays, spectrum renormalization, and singularities, *Phys. Rev. B*, Vol. 79, p. 144416 (2009).
- [8] Zheng, W., Fjærestad, J. O., Singh, R. R. P., McKenzie, R. H. and Coldea, R.: Excitation spectra of the spin- $\frac{1}{2}$ triangular-lattice Heisenberg antiferromagnet, *Phys. Rev. B*, Vol. 74, p. 224420 (2006).
- [9] Tsyrlin, N., Pardini, T., Singh, R. R. P., Xiao, F., Link, P., Schneidewind, A., Hiess, A., Landee, C. P., Turnbull, M. M. and Kenzelmann, M.: Quantum Effects in a Weakly Frustrated $S = 1/2$ Two-Dimensional Heisenberg Antiferromagnet in an Applied Magnetic Field, *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 102, p. 197201 (2009).
- [10] Masuda, T., Kitaoka, S., Takamizawa, S., Metoki, N., Kaneko, K., Rule, K. C., Kiefer, K., Manaka, H. and Nojiri, H.: Instability of magnons in two-dimensional antiferromagnets at high magnetic fields, *Phys. Rev. B*, Vol. 81, p. 100402 (2010).
- [11] Oh, J., Le, M. D., Jeong, J., Lee, J.-h., Woo, H., Song, W.-Y., Perring, T. G., Buyers, W. J. L., Cheong, S.-W. and Park, J.-G.: Magnon Breakdown in a Two Dimensional Triangular Lattice Heisenberg Antiferromagnet of Multiferroic LuMnO_3 , *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 111, p. 257202 (2013).
- [12] Ono, T., Matan, K., Nambu, Y., Sato, T. J., Katayama, K., Hirata, S. and Tanaka, H.: Large Negative Quantum Renormalization of Excitation Energies in the Spin-1/2 Kagome Lattice An-

- tiferromagnet $\text{Cs}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$, *Journal of the Physical Society of Japan*, Vol. 83, No. 4, p. 043701 (2014).
- [13] Goddard, P. A., Singleton, J., Sengupta, P., McDonald, R. D., Lancaster, T., Blundell, S. J., Pratt, F. L., Cox, S., Harrison, N., Manson, J. L., Southerland, H. I. and Schlueter, J. A.: Experimentally determining the exchange parameters of quasi-two-dimensional Heisenberg magnets, *New Journal of Physics*, Vol. 10, No. 8, p. 083025 (2008).
- [14] Selmani, V., Landee, C. P., Turnbull, M. M., Wikaira, J. L. and Xiao, F.: An extremely well isolated 2D-antiferromagnetic layer, *Inorganic Chemistry Communications*, Vol. 13, No. 12, pp. 1399 – 1401 (2010).
- [15] Fuhrman, W. T., Mourigal, M., Zhitomirsky, M. E. and Chernyshev, A. L.: Dynamical structure factor of quasi-two-dimensional antiferromagnet in high fields, *Phys. Rev. B*, Vol. 85, p. 184405 (2012).
- [16] E.M. リフシツ, L.P. ビタエフスキー：量子統計物理学, 岩波書店 (1982).
- [17] Cowley, R. A. and Woods, A. D. B.: Inelastic Scattering of Thermal Neutrons from Liquid Helium, *Can. J. Phys.*, Vol. 49, p. 177 (1971).
- [18] Gerrit E. W. Bauer, E. S. and Wees, van B. J.: Spin caloritronics, *Nature Materials*, Vol. 11, pp. 391–399 (2012).
- [19] Maekawa, S., Valenzuela, S. O., Saitoh, E. and Kimura, T.: *Spin Current (Semiconductor Science and Technology)*, Oxford Univ Pr (Txt), 136-148 pp. (2012).
- [20] Uchida, K., Xiao, J. A. H., J, O., Takahashi, S., Ieda, J., Ota, T., Kajiwara, Y., Umezawa, H., Kawai, H., Bauer, G. E. W., S, M. and Saitoh, E.: Spin Seebeck insulator, *Nat Mater*, Vol. 9, pp. 894–897 (2010).
- [21] Kadanoff, L. P. and Martin, P. C.: Hydrodynamic equations and correlation functions, *Annals of Physics*, Vol. 24, No. 0, pp. 419 – 469 (1963).
- [22] Sentef, M., Kollar, M. and Kampf, A. P.: Spin transport in Heisenberg antiferromagnets in two and three dimensions, *Phys. Rev. B*, Vol. 75, p. 214403 (2007).
- [23] Sentef, M. A.: *Linear-Response Theory of Spin Transport*, PhD thesis, University of Augsburg (2006).
- [24] Heidrich-Meisner, F., Honecker, A. and Brenig, W.: Thermal transport of the XXZ chain in a magnetic field, *Phys. Rev. B*, Vol. 71, p. 184415 (2005).
- [25] Langer, S., Darradi, R., Heidrich-Meisner, F. and Brenig, W.: Field-dependent spin and heat conductivities of dimerized spin- $\frac{1}{2}$ chains, *Phys. Rev. B*, Vol. 82, p. 104424 (2010).
- [26] Schütz, F., Kopietz, P. and Kollar, M.: What are spin currents in Heisenberg magnets?, *The European Physical Journal B - Condensed Matter and Complex Systems*, Vol. 41, No. 4, pp. 557–560 (2004).
- [27] Kubo, Y. and Kurihara, S.: Spin Conductivity in Two-Dimensional Non-Collinear Antiferromagnets, *J. Phys. Soc. Jpn.*, Vol. 82, No. 11, p. 113601 (2013).
- [28] Shastry, B. S. and Sutherland, B.: Twisted boundary conditions and effective mass in Heisenberg-

- Ising and Hubbard rings, *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 65, pp. 243–246 (1990).
- [29] Scalapino, D. J., White, S. R. and Zhang, S.: Insulator, metal, or superconductor: The criteria, *Phys. Rev. B*, Vol. 47, pp. 7995–8007 (1993).
- [30] Dagotto, E.: Correlated electrons in high-temperature superconductors, *Rev. Mod. Phys.*, Vol. 66, pp. 763–840 (1994).
- [31] Maldague, P. F.: Optical spectrum of a Hubbard chain, *Phys. Rev. B*, Vol. 16, pp. 2437–2446 (1977).
- [32] Zhitomirsky, M. E. and Nikuni, T.: Magnetization curve of a square-lattice Heisenberg antiferromagnet, *Phys. Rev. B*, Vol. 57, pp. 5013–5016 (1998).
- [33] Kubo, Y. and Kurihara, S.: Tunable rotons in square-lattice antiferromagnets under strong magnetic fields, *Phys. Rev. B*, Vol. 90, p. 014421 (2014).
- [34] Lüscher, A. and Läuchli, A. M.: Exact diagonalization study of the antiferromagnetic spin- $\frac{1}{2}$ Heisenberg model on the square lattice in a magnetic field, *Phys. Rev. B*, Vol. 79, p. 195102 (2009).
- [35] Syljuåsen, O. F.: Numerical evidence for unstable magnons at high fields in the Heisenberg antiferromagnet on the square lattice, *Phys. Rev. B*, Vol. 78, p. 180413 (2008).
- [36] Chernyshev, A. L. and Zhitomirsky, M. E.: Hydrodynamic relation in a two-dimensional Heisenberg antiferromagnet in a field, *Phys. Rev. B*, Vol. 79, p. 174402 (2009).
- [37] Chubukov, A. V. and Starykh, O. A.: Spin-Current Order in Anisotropic Triangular Antiferromagnets, *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 110, p. 217210 (2013).
- [38] Greywall, D. S.: Specific heat and phonon dispersion of liquid He^4 , *Phys. Rev. B*, Vol. 18, pp. 2127–2144 (1978).
- [39] Heidrich-Meisner, F.: *Transport Properties Of Low-Dimensional Quantum Spin Systems*, PhD thesis, Technischen Universität Carolo-Wilhelmina (2005).
- [40] Chen, Z., Datta, T. and Yao, D.-X.: Spin transport in the Néel and collinear antiferromagnetic phase of the two dimensional spatial and spin anisotropic Heisenberg model on a square lattice, *Eur. Phys. J. B*, Vol. 86, No. 2, p. 63 (2013).
- [41] Pires, A. S. T. and Lima, L. S.: Spin transport in antiferromagnets in one and two dimensions calculated using the Kubo formula, *Phys. Rev. B*, Vol. 79, p. 064401 (2009).
- [42] Alvarez, J. V. and Gros, C.: Conductivity of quantum spin chains: A quantum Monte Carlo approach, *Phys. Rev. B*, Vol. 66, p. 094403 (2002).
- [43] Einarsson, T. and Schulz, H. J.: Direct calculation of the spin stiffness in the J_1 - J_2 Heisenberg antiferromagnet, *Phys. Rev. B*, Vol. 51, pp. 6151–6154 (1995).
- [44] Kawamura, H.: Spin-Wave Analysis of the Antiferromagnetic Plane Rotator Model on the Triangular Lattice—Symmetry Breaking in a Magnetic Field, *Journal of the Physical Society of Japan*, Vol. 53, No. 8, pp. 2452–2455 (1984).
- [45] Mahan, G. D.: *Many-Particle Physics*, Plenum Press, New York, 3rd edition, 160 pp. (2000).