

論文内容の要旨

博士論文題目

2次元正方格子上の t_{2g} Hubbard 模型の軌道秩序状態の群論的方法による分類

氏 名

濱田 正則

(論文内容の要旨)

ペロブスカイト型マンガン酸化物における巨大磁気抵抗効果の発見が契機となって、強相関電子系における電子の電荷とスピンの自由度に加えて、電子の軌道の自由度の物性への寄与が注目されるようになった。マンガン系酸化物では e_g 軌道が物性に関与するが、ルテニウム系酸化物では t_{2g} 軌道が関与し、その強軌道秩序状態は、共鳴 X 線散乱干渉法を用いることにより層状物質 $\text{Ca}_{2-x}\text{Sr}_x\text{RuO}_4$ において初めて観測された。この物質は組成や温度を変えることで常磁性金属、反強磁性金属、反強磁性絶縁体など様々な相を見せることが知られている。 t_{2g} 軌道は 4d 電子の 5 個の原子軌道のうち d_{yz} 、 d_{zx} 、 d_{xy} の 3 個から成っており、ペロブスカイト型酸化物の場合には、他の 2 個の軌道よりもエネルギー準位が低い。Hotta と Dagotto は Ru 原子の $t_{2g}(4d)$ 軌道に 4 個の電子を持つ $\text{Ca}_{2-x}\text{Sr}_x\text{RuO}_4$ について、 t_{2g} Hubbard 模型を用いた解析を行い、軌道秩序状態を伴った興味深い磁性状態の可能性を示唆した。本研究は、どのような磁性状態および軌道秩序状態が起り得るかを、群論的手法により更に一般的に調べたものである。

3次元立方格子上の t_{2g} Hubbard 模型に適応された群論的分岐理論を 2次元正方格子に適用し、ハートレー・フォック (HF) 近似を用いて、スピンおよび軌道の秩序状態の分類を秩序ベクトル $Q_0 = (0, 0)$ 、 $Q_1 = (\pi, \pi)$ 、 $Q_2 = (\pi, 0)$ 、 $Q_3 = (0, \pi)$ について行った。先行研究では扱わなかった non-collinear な磁性状態も解析に取り入れた。分類の結果として 30 個の軌道秩序状態 (非磁性状態) と 41 個の軌道・スピン秩序状態 (磁性状態) を、非秩序状態からの 1 段階転移で現れる状態として得た。また、1 段階転移で得られた個々の状態から、更に対称性が破れた状態として現れ得る 2 段階転移の状態に関して 5 個の状態を取り上げた。このとき得られる個々の HF ハミルトニアンに対称群は、系の元の対称群の部分群のうち、軸性固定部分群によって記述される。そして、個々の状態はそれぞれの対称性に応じて強軌道秩序または反強軌道秩序を持ち、これと磁気的秩序が複合した形で様々な秩序状態が現れる。

このようにして得られた 76 個の全ての状態 (HF ハミルトニアン) に対してエネルギーを計算し、 (δ, U) 平面での相図を求めた。ここで δ は t_{2g} 軌道内での結晶場分裂の大きさであり、 U は軌道内クーロン相互作用エネルギーである。計算では、波動関

数の形状を考慮して重なり積分に異方性を持たせた。解析の結果、以下のことが分かった。 $U \leq 3.0$ （エネルギーの単位は最大の重なり積分）では非磁性状態が広い範囲で現れるが、最低エネルギーの近傍に複数のエネルギー準位が集まっているため、最低エネルギー準位を十分な正確さをもって決定することができない。 $U \geq 4.0$ では、最低エネルギー状態として4個の状態が現れるが、それらは全て磁性状態である。そのうちの1個は反強的軌道秩序状態で、磁気的には通常 of 反強磁性状態であり、 δ が正の領域に現れ、また δ が負の領域では反強磁性的な強軌道秩序状態が広い範囲で現れることが示された。

(論文審査結果の要旨)

低次元強相関電子系は、強い電子間相互作用と量子揺らぎのために高温超電導などの興味ある物性を示す。そこでは、通常の金属や半導体と異なり、電子の電荷とスピンの自由度が異なった振る舞いをする（スピン電荷分離）。電子相関が強い場合には、電荷とスピンの自由度に加えて軌道の自由度の物性への寄与が注目されている。例えば、ペロブスカイト型マンガン酸化物における巨大磁気抵抗効果は、基礎物性的にもまた磁気記録素子への応用上も注目されている。しかし、マンガン系酸化物では主にマンガン原子の e_g 軌道が物性に関与しているが、より自由度の大きな t_{2g} 軌道が物性に関与する系は、物質の合成の難しさと解析の複雑さによりこれまであまり研究が進んでいなかった。

本論文では、組成や温度を変えることで常磁性金属、反強磁性金属、反強磁性絶縁体など様々な相を見せることが知られている層状物質 $\text{Ca}_{2-x}\text{Sr}_x\text{RuO}_4$ に着目し、2次元 t_{2g} Hubbard 模型に対して群論的手法を用いることにより、どのような磁性状態および軌道秩序状態が起こり得るかを一般的に調べたものである。

3次元立方格子上の t_{2g} Hubbard 模型に適応された群論的分岐理論を2次元正方格子に適用し、ハートレー・フォック (HF) 近似を用いて、スピンおよび軌道の秩序状態の分類を秩序ベクトル $\mathbf{Q}_0 = (0, 0)$ 、 $\mathbf{Q}_1 = (\pi, \pi)$ 、 $\mathbf{Q}_2 = (\pi, 0)$ 、 $\mathbf{Q}_3 = (0, \pi)$ について行った。分類の結果、非秩序状態からの1段階転移で現れる状態として、30個の軌道秩序状態（非磁性状態）と41個の軌道・スピン秩序状態（磁性状態）を得た。また、1段階転移で得られた個々の状態から、更に対称性が破れた状態として現れ得る2段階転移の状態に関して5個の状態を得た。個々の状態は強軌道秩序または反強軌道秩序を持ち、これと磁気的秩序が複合した形で様々な秩序状態が現れる。

このようにして得られた76個の全ての状態 (HFハミルトニアン) に対してエネルギーを計算し、結晶場分裂の大きさ δ と軌道内クーロン相互作用エネルギー U に関する相図を求めた。 U が重なり積分の3倍程度以下では、最低エネルギーの近傍に複数の非磁性状態が現れるが、それより U が大きい領域では、最低エネルギー状態として4個の磁性状態が現れる。そのうちの1個は反強磁性的な反強軌道秩序状態で、 δ が正の領域に現れる。また δ が負の領域では反強磁性的な強軌道秩序状態が広い範囲で現れることが示された。

本論文で得られた群論的手法を用いた一般的な結果は、従来のルテニウム系酸化物に関する実験結果を説明するのみならず、軌道秩序が関与した強相関電子系材料の今後の開発に重要な指針を与えるものであり、学術的に大きな意義を有する。よって、審査員一同、本論文が博士 (理学) の学位論文として価値があるものと認めた。