

令和 4 年 6 月 14 日現在

機関番号：38005

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2021

課題番号：19K14665

研究課題名(和文) 波紋秩序状態の起源解明および実物質での実現可能性-新たな磁気構造物質の創出-

研究課題名(英文) Elucidation of the Origin of Ripple State and its Feasibility in Real Materials
- Creation of New Magnetic Structured Materials

研究代表者

下川 統久朗 (Shimokawa, Tokuro)

沖縄科学技術大学院大学・量子理論ユニット・スタッフサイエンティスト

研究者番号：20633853

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,400,000円

研究成果の概要(和文)：リング縮退という特殊な縮退構造を母体として、熱・量子揺らぎが織りなす新奇な磁性現象に関する数値的研究を行った。J1-J2古典ハニカム格子磁性体では波紋秩序状態や副格子スカーミオン格子状態などの新奇な多重Q状態が実現することが明らかになった。また量子スピン液体候補物質Ca10Cr7O28の有効モデルであるS=1/2二層カゴメハイゼンベルグモデルの有限温度下においてスパイラルスピン液体の実現が明らかになった。更に高磁場に特化した新しい厳密対角化コードQS3を開発・オープンソース化し、高磁場スピンドYNAMIXの解析から同二層カゴメモデルでスパイラルスピン液体・U(1)スピン液体の傍証を得ることも出来た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

理論的・数値的取り扱いが難しいフラストレート磁性体における特殊なリング型縮退構造に対する熱・量子揺らぎの効果を厳密数値計算を通して調べたという意味で学術的意義は大きいと言える。また本研究成果の一部であるハニカム系での新しいタイプの多重Q秩序状態の発見は、省電力ナノデバイスなどへの応用の観点からも重要である。特に波紋秩序状態は伝導電子と結合することで誘電分極渦を作り出すことが可能な特殊なスピントクスチャを併せ持つため、今後の工学的応用が期待される。また本研究で開発・高度化・オープンソース化された厳密対角化コードは物性物理分野の枠組みをも超えた更なる利用が期待される。

研究成果の概要(英文)：We have studied quantum and thermal magnetic phenomena born from a ring degeneracy utilizing some non-biased numerical methods. We found that novel multiple-Q states such as a ripple state and sublattice Skyrmion-lattice states are realized in the J1-J2 classical honeycomb lattice magnets. The S=1/2 bilayer breathing Kagome Heisenberg model, an effective model of the quantum spin liquid candidate Ca10Cr7O28, is found to realize a spiral spin liquid state at finite temperature. We have developed and open-sourced a new exact diagonalization code QS3 specialized for high magnetic fields and have obtained numerical evidence for spiral spin liquid and U(1) spin liquid states in high magnetic fields.

研究分野：磁性理論

キーワード：数値計算 フラストレーション スピン系 多重Q秩序状態 スピン液体 厳密対角化法 モンテカルロ法

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

フラストレーションを有する磁性体はその相互作用の競合により基底状態にマクロな縮退がしばしば現れる。この縮退構造に熱や量子揺らぎの効果が加わることで直感的には理解し難い新奇な磁性現象が生まれるため、注目を集めている。最近接相互作用と次近接相互作用の競合によりフラストレーション効果を有する古典ハニカム格子ハイゼンベルク反強磁性体ではその基底状態にリング型縮退構造を持つことが知られており、この縮退構造に対する熱・量子揺らぎの効果がリング(スパイラル)液体やパンケーキ液体などの特殊なスピン液体状態を生み出すことで知られていた。一方でこのモデルでは有限温度磁場中における秩序化の可能性、特に複数の異なる波数が共存する多重 Q 秩序状態の実現可能性が指摘されていたものの、その波数の強い非整合性のために特殊なパラメータ上でしか議論されて来なかった。また新しい量子スピン液体候補物質である $S=1/2$ 二層カゴメ格子磁性体 $\text{Ca}_{10}\text{Cr}_7\text{O}_{28}$ では非弾性中性子散乱実験において低エネルギー側にリング型の構造が報告されるなど、ハニカム格子磁性体におけるスパイラル液体状態との関連が指摘されており、リング型縮退構造に対する量子揺らぎの効果を調べる研究が強く求められていた。

2. 研究の目的

このような背景のもとで、本研究では古典フラストレートハニカム格子反強磁性体の有限温度磁場中における新奇な多重 Q 秩序状態の実現可能性を数値的に調べ、特に研究代表者の予備的な計算によってその実現可能性が顕になった、波紋秩序状態というこれまでにない新しいタイプの状態の安定性や発現機構の詳細を明らかにし、 $\text{Ca}_{10}\text{Cr}_7\text{O}_{28}$ などを念頭に実物質での実現可能性を検証することを目指した。

3. 研究の方法

本研究では複数の厳密数値計算手法を用いた。まず古典フラストレートハニカム格子磁性体における多重 Q 秩序状態の実現可能性を探る上では、リング型縮退構造に対する熱揺らぎの効果を近似なしに評価することが可能な古典モンテカルロ法を用いた。温度交換法や熱欲法などの複数のアルゴリズムを組み合わせて、さらに波数の強い非整合性から来る有限サイズ効果を克服するために、ハイブリッド並列化を施した独自のモンテカルロコードを用いた大規模数値計算を国内の大型計算機 (ISSP/OIST) を利用して行った。また二層カゴメ格子磁性体 $\text{Ca}_{10}\text{Cr}_7\text{O}_{28}$ における量子揺らぎの効果を評価するために厳密対角化法や熱的純粋量子状態法を用いた。特に研究課題の研究費で購入したワークステーションや自然科学研究機構の大型計算機を利用して飽和磁場近傍に特化した厳密対角化コード quantum spin solver near saturation (QS³)の開発・高度化を行い、 $\text{Ca}_{10}\text{Cr}_7\text{O}_{28}$ の有効モデルの飽和磁場近傍における静的・動的性質を大規模な有限系を用いて厳密に調べた。

4. 研究成果

本研究ではまず、古典ハニカム格子反強磁性体における多重 Q 秩序状態の実現可能性を大規模モンテカルロ法によって調べた。その結果、最近接相互作用 J_1 と次近接相互作用 J_2 の比が $J_2/J_1 \sim 0.18$ という波数の非整合性が極めて強い領域において波紋秩序状態が熱力学的に安定に実現することが明らかになった。波紋秩序状態では、並進対称性が破れているにも関わらず結晶性を有しない、その母体となるリング(スパイラル)液体状態からの相転移後にも関わらずスピン構造因子にてリング性を有する、などと言った従来の秩序状態とは根本的に異なる振る舞いを示すことが明らかになった。また波紋秩序状態の特殊なスピントクスチャが伝導電子と結合することで巨大な誘電分極渦を創出することも判明し、応用工学上の有用性も議論した。[下川、川村、PRL **123**, 057202 (2019).]

さらにより広い J_2/J_1 空間における多重 Q 秩序状態の実現可能性を調べた。 $J_2/J_1 > 0.2$ では波紋秩序状態は安定ではなく、代わりに有限温度磁場相図中における低温秩序状態はその多くが single-q スパイラル秩序状態に置き換わることが明らかになった。しかしながら $J_2/J_1 \sim 0.3$ 近辺ではメロン型スピントクスチャを持つ double-q 秩序状態やコリニア型の triple-q 秩序状態などの複数の多重 Q 秩序状態が発現することが明らかになった。[下川、大久保、川村 PRB **100**, 224404 (2019).]

多種多様な多重 Q 秩序状態の実物質での実現可能性を明らかにするための一歩として近年新しい量子スピン液体候補物質として注目を集めている $S=1/2$ 二層カゴメ磁性体 $\text{Ca}_{10}\text{Cr}_7\text{O}_{28}$ の有効

模型として知られる $S=1/2$ bilayer breathing Kagome (BBK) ハイゼンベルク模型の基底状態および有限温度下の性質を厳密対角化法と熱的純粋量子状態法を用いて調べた。最大 36 サイトまでの有限系クラスターを用いた Anderson tower による解析から、基底状態では通常の磁気秩序状態とは異なる無秩序状態の実現可能性があることが判明し、さらに有限温度下では構造因子にリング型の構造が出現することが明らかになった。これにより量子 BBK 模型でもスパイラル液体状態が実現することが厳密な計算により明らかになった。

また新しい厳密対角化コード quantum spin solver near saturation (QS^3)を開発・高度化[上田、柚木、下川 CPC 277,108369 (2022).]し、 $S=1/2$ BBK 模型の高磁場における動的構造因子を約 2000 サイトの大規模系にて計算したところ、低エネルギー側でハニカム格子磁性体のスパイラルスピン液体状態の傍証であるリング型の特徴が、また中・高エネルギー側ではカゴメ格子磁性体の $U(1)$ スピン液体状態の傍証である蝶ネクタイ型の構造を明瞭に捉えることに成功した。なお開発した QS^3 はオープンソースソフトウェアとして <https://github.com/QS-Cube/ED> に公開されている。

研究の過程で $S=1/2$ BBK 模型における有限温度相転移の可能性を調べる必要性が出てきた。熱的純粋量子状態法を用いて有限温度相転移の特徴をどのように捉えるかという問題が発生したため、まずは基底状態の素性がよく知られている $S=1/2$ Shastry-Sutherland(SS)模型を取り扱うことにした。先行研究により SS 模型のあるパラメータ領域では、基底状態として鏡映対称性が自発的に破れた plaquette-singlet 状態が実現することが報告されており、有限温度下ではこの離散対称性が破れる形での相転移が自然と期待できる。熱的純粋量子状態法を用いて相関関数の温度依存性を調べた結果、低温で鏡映対称性の破れの兆候を、有限系にも関わらず、さらに二点相関関数のレベルで明瞭な形で捉えられることが明らかになった。 QS^3 コードに内装されていた thick-restarted Lanczos 法を用いて有限系の励起状態を調べた結果、熱的純粋量子状態法の各サンプルは励起状態における縮退を引っ掛ける形で二点相関関数レベルでの離散対称性の破れの兆候を示すことが明らかになった。[下川、PRB 103, 134419 (2021).]

$S=1/2$ BBK 模型は最近接相互作用が強磁性的な $S=3/2$ J_1 - J_2 フラストレートハニカム格子磁性体に対応させることが可能である。そこで古典 J_1 - J_2 フラストレートハニカム格子磁性体を再び古典モンテカルロ法を用いて取扱うことで有限温度磁場中での多重 Q 秩序状態の可能性を検証することにした。二層カゴメ磁性体 $Ca_{10}Cr_7O_{28}$ に対応させるべく $J_2/|J_1| \sim 1.25$ 周りに絞る形で大規模数値計算を行ったところ、6 つの副格子構造を持った副格子スカーミオン格子状態の実現を見出すことに成功した。このスカーミオン格子状態では系全体としてのトータルスカラーを有限に持つことが可能であることや、その符号がモンテカルロ計算に用いられる初期状態に依存して変化し、カイラリティ自由度が自発的に破れることも判明した。過去の研究では三角格子磁性体を舞台として DM 相互作用などの反対称的な相互作用がない状況でもスカーミオン格子状態の実現が報告されていたが、我々が知る限りハニカム格子磁性体での同状態の発現事例は今回が初めてであると思われる。一方で反強磁性的な J_1 相互作用を持つハニカム格子磁性体とは異なり、強磁性的な J_1 相互作用を持つハニカム格子磁性体では波紋秩序状態の存在は現在のところ確認されておらず、更なる研究が求められている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Ueda Hiroshi, Yunoki Seiji, Shimokawa Tokuro	4. 巻 277
2. 論文標題 Quantum spin solver near saturation: QS3	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Computer Physics Communications	6. 最初と最後の頁 108369 ~ 108369
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cpc.2022.108369	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Shimokawa Tokuro	4. 巻 103
2. 論文標題 Signatures of finite-temperature mirror symmetry breaking in the S=12 Shastry-Sutherland model	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 134419 1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.103.134419	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Tokuro Shimokawa, Hikaru Kawamura	4. 巻 123
2. 論文標題 Ripple state in the frustrated honeycomb-lattice antiferromagnet	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review Letter	6. 最初と最後の頁 057202-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.123.057202	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Tokuro Shimokawa, Tsuyoshi Okubo, Hikaru Kawamura	4. 巻 100
2. 論文標題 Multiple-q states of the J1-J2 classical honeycomb-lattice Heisenberg antiferromagnet under magnetic fields	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 224404-1-15
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.100.224404	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計9件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 5件）

1. 発表者名 Tokuro Shimokawa
2. 発表標題 Spiral spin liquid and multiple-q states in the frustrated honeycomb-lattice Heisenberg magnet
3. 学会等名 ARHMF2020 & KINKEN Materials Science School 2020 for Young Scientists (Online) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Tokuro Shimokawa, Rico Pohle, Han Yan, Nicholas Shannon
2. 発表標題 Thermal and dynamical properties of the $S=1/2$ bilayer breathing-kagome Heisenberg magnet - application to $\text{Ca}_{10}\text{Cr}_7\text{O}_{28}$ -
3. 学会等名 American Physical Society March Meeting 2021 (Online) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Tokuro Shimokawa, Rico Pohle, Han Yan, Nic Shannon
2. 発表標題 Spin dynamics in $S=1/2$ bilayer breathing-kagome Heisenberg magnet
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会 (Online)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 上田 宏, 柚木 清司, 下川 統久朗
2. 発表標題 飽和磁化近傍系の物性解析に特化した量子スピンソルバー QS3
3. 学会等名 日本物理学会 第76回年次大会 (Online)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Tokuro Shimokawa, Hikaru Kawamura
2. 発表標題 Ripple state in the frustrated honeycomb-lattice antiferromagnet
3. 学会等名 Computational Approaches to Quantum Many-body Problems (CAQMP) 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Tokuro Shimokawa
2. 発表標題 Multiple-q states in the frustrated honeycomb-lattice Heisenberg antiferromagnet under magnetic field
3. 学会等名 14th Asia-Pacific Physics Conference (APPC 2019) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Tokuro Shimokawa, Nic Shannon
2. 発表標題 Ground state and thermodynamic properties of the S=1/2 bilayer breathing-kagome Heisenberg magnet
3. 学会等名 Computational Approaches to Quantum Many-body Problems (CAQMP) 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Tokuro Shimokawa
2. 発表標題 Finite and zero temperature physics in the S=1/2 bilayer breathing-kagome magnet
3. 学会等名 第14回量子スピン系研究会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Tokuro Shimokawa
2. 発表標題 Finite-temperature properties of the S=1/2 Shastry-Sutherland model
3. 学会等名 日本物理学会秋季大会2019
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

FY2020 Annual Report https://groups.oist.jp/tqm/fy2020-annual-report

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	川村 光 (Kawamura Hikaru) (30153018)	神戸大学・分子フォトサイエンス研究センター・客員教授	
研究協力者	大久保 毅 (Okubo Tsuyoshi) (00514051)	東京大学・大学院理学系研究科(理学部)・特任准教授	
研究協力者	上田 宏 (Ueda Hiroshi) (40632758)	大阪大学・量子情報・量子生命研究センター・准教授	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	袖木 清司 (Yunoki Seiji) (70532141)	国立研究開発法人理化学研究所・計算科学研究センター・量子コンピュータ研究センター・開拓研究本部・チームリーダー	
研究協力者	シャノン ニック (Shannon Nic) (70751585)	沖縄科学技術大学院大学・量子理論ユニット・教授	
研究協力者	ポーレ リコ (Pohle Rico)	東京大学・大学院工学系研究科・特任研究員	
研究協力者	ヤン ハン (Yan Han)	ライス大学・Department of Physics & Astronomy・Rice Academy Junior Fellow	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関