

令和元年5月31日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2018

課題番号：15K17701

研究課題名(和文) テンソルネットワーク法によるフラストレート量子スピン系の新奇秩序探索

研究課題名(英文) Study on frustrated quantum spin systems by tensor network method

研究代表者

大久保 毅 (Okubo, Tsuyoshi)

東京大学・大学院理学系研究科(理学部)・特任講師

研究者番号：00514051

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、二次元の量子フラストレート磁性体の基底状態を、波動関数を小さなテンソルの積で記述するテンソルネットワーク法を用いて解析した。S=1/2カゴメ格子ハイゼンベルグ量子スピンモデルについては、磁場中での基底状態を計算し、複数の磁化プラトーの存在を明らかにした他、1/3プラトーでは、六角形ループ上のスピンの共鳴状態を形成していることを示した。また、Kitaev相互作用が強く存在する物質、Na₂IrO₃について、その基底状態相図を明らかにした。さらに、強磁性と反強磁性の共存によりフラストレーションが存在する正方格子モデルについて、磁場中でスピンゆらぎが非常に大きくなることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により量子フラストレート磁性体の基底状態を計算する強力な手法として、テンソルネットワーク法を確立することができた。種々のフラストレート磁性体に対して得られた結果は、実験での観測をよく説明できており、計算物理の立場からこれらの物質の理解に寄与することができた。特に、Kitaev相互作用が強い物質については、本研究を通して、Kitaevスピン液体状態のテンソルネットワークを用いた理解が進み、定量的にだけでなく、定性的にも大きな進展があった。この成果は、今後のKitaev物質の物性理解にも活かせると期待している。

研究成果の概要(英文)：In this study, we have investigated several frustrated quantum spin systems by using the tensor network method. First, for S=1/2 kagome lattice Heisenberg model, we have shown that several magnetization plateaus were stabilized under a magnetic field. Especially, at the 1/3 plateau, we clarified that the six spins on hexagons formed a resonated state. Second, for an ab initio Hamiltonian of Na₂IrO₃, which has strong Kitaev interaction, we found ground state phase diagram consistent with experimental observations. Finally, for frustrated square lattice Heisenberg model with ferromagnetic and antiferromagnetic interactions, we found that quantum spin fluctuation was enhanced under a magnetic field, which was consistent with experimental observations on corresponding an organic compound.

研究分野：統計物理学

キーワード：テンソルネットワーク フラストレーション 磁性体 相転移 スピン液体 スピン軌道相互作用

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19(共通)

1. 研究開始当初の背景

近年の磁性体研究では、複数の最適化条件が競合する、フラストレーションという概念に興味が集まり、それが引き起こす様々な新奇現象に興味が持たれている。三角形上で反強磁性相互作用するスピンはこの様なフラストレーションの典型例であり、異方性の強い極限であるイジングスピンでは、幾何学的な要請から、全てのボンドでスピンを反平行に揃えることができずにフラストレーションが生じる。この様なフラストレーションは基底状態の縮退を増大させ、しばしば、低温まで長距離秩序を持たないスピン液体状態を安定化させる。近年では、このスピン液体に存在する隠れたトポロジカル秩序と、それによるスピン液体の分類が重要な研究課題となっている。一方、スピンの異方性が小さく回転自由度がある場合には、フラストレーションを解消するために、スピンの互いに傾いた状態が安定化する。この状態では、スピンの傾きに関する新たな自由度が生じ、スピンの外積やスカラー三重積で定義されるカイラリティがスピンの秩序化に多様性を生み出す源になる。カイラリティは、マルチフェロイクスと呼ばれる磁性と強誘電性の共存現象や、金属おける異常ホール効果などの輸送特性を引き起こし、新しい物理の舞台を提供している。

このように、フラストレーションは興味深い現象の源となっているが、近似理論や有効理論から期待される振る舞いを、現実の物質に基づくミクロな模型で検証しようとする場合に、困難が伴う場合がある。特に、スピン量子数 (S) の小さい物質を対象とする量子スピン模型では、通常は強力な計算手法として働く量子モンテカルロ法が、確率が負の値をとる、いわゆる負符号問題により効率的に働かないため、これまでは、密度行列くり込み群が大きな成功をおさめた一次元系を除き、厳密対角化等を用いて少数系を計算することしかできていなかった。

しかし、近年になって、量子情報理論からの知見の輸入により、二次元量子系の基底状態波動関数をテンソルのつながりで表現するテンソルネットワーク法が開発され、注目を集めている。テンソルネットワーク法は、基底状態の量子的な相関に着目する事で、スピン液体やバレンスボンド固体等の量子状態を少ない変数で表現できる工夫がなされており、また、負符号問題のような不都合も生じない。そのため、テンソルネットワーク法は、これまで数値的なアプローチが困難だったフラストレート量子スピン系に挑むための、一つの希望となっている。

二次元量子系の基底状態を計算する場合、最もよく用いられる方法は、Projected Entangled Pair States(PEPS)と呼ばれる、波動関数を二次元のテンソルのつながりで表す方法である。このPEPSは、一次元系で成功した密度行列くり込み群を二次元へ拡張したものと捉えることができる。また、PEPSの大きな特徴は、無限に大きい系の基底状態を計算できることであり、厳密対角化からの外挿では到達が困難だった熱力学極限の情報を直接得る事ができる。これまで、PEPSを含めたテンソルネットワーク法の研究では、アルゴリズムの発展や手法の開発に重点が置かれていたが、ここ数年になって、物理的に未解明な問題に対する適用が報告され初めている。

2. 研究の目的

本研究では、フラストレート磁性体における、スピン液体、トポロジカル秩序等の新奇秩序状態を、テンソルネットワーク法を用いて数値的に解析することで、フラストレート量子スピン系の物性を理解することを目的とする。フラストレートした相互作用が存在する場合、強力な計算手法である量子モンテカルロ法が負符号問題のために有効に働かず、これまでは、少数サイトの厳密対角化等、熱力学極限にはほど遠い計算のみしか行えなかった。近年開発が進んでいるテンソルネットワーク法は、その困難を乗り越え、非常に大きな系の基底状態を計算できる。この手法により、種々の二次元量子スピン系の物性を明らかにすることが、本研究のゴールである。

3. 研究の方法

本研究では二次元フラストレート量子スピン模型の基底状態をテンソルネットワーク法により解析する。申請時点で、再近接相互作用のみの二次元模型に対する計算コードは成熟しており、当面はこの計算コードを歪んだカゴメ格子模型に適用して磁場中での基底状態の計算を行う。これと並行して、二次近接以上の相互作用を持つ模型へのアルゴリズムの拡張を行い、28年度以降にそれを用いた模型の解析と進む計画である。これらの目標が達成された時点で、スピン液体相でテンソル最適化の改善に取り組み、最終的にはその成果を用いて、二次元量子スピン系におけるスピン液体相の探索を行う。

4. 研究成果

第一に、二次元フラストレート磁性体の典型例である、 $S=1/2$ カゴメ格子ハイゼンベルグ量子スピン模型の磁場中での基底状態を、無限系の波動関数を表現出来る、PEPSテンソルネットワーク変分法により明らかにした。二次元密度行列繰り込み群法(DMRG)による計算から予

想されていた、飽和磁化の 1/9、1/3、5/9、7/9 での磁化プラトー状態の存在が確認できた一方で、1/3 プラトー近傍の磁化過程は、DMRG や厳密対角化の予想とは異なる指数を持つ、ベキ関数の振る舞いをする事が明らかとなった。この 1/3 プラトー状態の磁気秩序を多体の相関を効率的に取り入れる「ループ最適化」を用いて詳細に調べた結果、 $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ 型や $q=0$ 型の半古典的な磁気秩序よりも、カゴメ格子の六角形ループ上で 6 つのスピンの $S=0$ の共鳴状態を作る磁気秩序の方がエネルギーが低くなることを明らかにした。この共鳴状態は従来の DMRG で提案されていたものと同じのものだと考えられる。さらに、Dzyaloshinskii-Moriya (DM) 相互作用がプラトー状態に与える影響を解析し、ハイゼンベルグ相互作用の 10% 程度の大きさの DM 相互作用の存在で、1/3 プラトーを始めとする磁化プラトーが消失することを明らかにした。これらの結果を実験と比較した結果も含め、論文①として発表した。

第二に、強いスピン軌道相互作用のために、方向に依存して異なるスピン成分がイジング的に相互作用するキタエフ相互作用を持つとされている Na_2IrO_3 について、第一原理計算から導出された、*ab initio* ハミルトニアン基底状態を PEPS テンソルネットワーク法により解析し、実験での観測と一致する zigzag 磁気秩序状態が安定化することを明らかにした。さらに、実験的に圧力などで制御可能な三方晶歪みを変化させた場合の基底状態相図の解析を進め、少数サイトの厳密対角化法(ED)から予想されていたよりも多様な磁気秩序相が安定化することを明らかにし、論文⑥として発表した。さらに、キタエフモデルのスピン液体状態を定性的に表現する PEPS テンソルネットワーク状態を提案し、その状態を初期状態とした最適化を行うことで、 Na_2IrO_3 の格子定数が実際よりも大きくなった状況で、スピン液体状態が安定化することを示した。

また、 Na_2IrO_3 の基底状態計算に用いたテンソルネットワーク変分法による発展させ、同種のハニカム格子物質 $\alpha\text{-RuCl}_3$ の有効モデルの基底状態計算を行った。この有効モデルは、キタエフ相互作用に加えて、ガンマ相互作用と呼ばれる、キタエフ相互作用とは異なる成分の非対角相互作用 (例えば、 $S_x S_x$ のキタエフ相互作用に対しては、 $S_x S_y + S_y S_x$ の非対角相互作用)を持ち、キタエフ・ガンマモデルと呼ばれている。無限系の PEPS を虚時間発展法により最適化した結果、これまでに ED や DMRG で予想されていたよりも、スピン液体が安定化する領域が狭く、広い領域で磁気秩序状態が最低エネルギー状態となることを明らかにした。

第三に、有機磁性体の有効モデルとして、強磁性相互作用と反強磁性が共存することでフラストレーションが存在する $S=1/2$ フラストレート正方格子ハイゼンベルグモデルの磁化過程をテンソルネットワーク変分法で解析した。実験で飽和磁化の 1/2 あたりに観測されていた磁化曲線のうねりが、有効モデルの磁化曲線でも観測され、さらに、その近傍で、スピン揺らぎが非常に強くなっていることも明らかにした。さらに、モデルのパラメタを対象物質の近傍から変化させることにより、このスピンゆらぎの起源が、1/2 磁化プラトーにあることを示し、自家曲線のうねりは、磁化プラトーの名残であることを明らかにした。この成果は、対応する実験と併せて、論文②として発表した。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 6 件)

- ① R. Okuma, D. Nakamura, T. Okubo, A. Miyake, A. Matsuo, K. Kindo, M. Tokunaga, N. Kawashima, S. Takeyama and Z. Hiroi, “A series of magnon crystals appearing under ultrahigh magnetic fields in a kagomé antiferromagnet”, *Nature Communications* **10**, 1229 (2019).
DOI: 10.1038/s41467-019-09063-7
- ② H. Yamaguchi, Y. Sasaki, T. Okubo, M. Yoshida, T. Kida, M. Hagiwara, Y. Kono, S. Kittaka, T. Sakakibara, M. Takigawa, Y. Iwasaki, and Y. Hosokoshi, “Field-enhanced quantum fluctuation in an $S=1/2$ frustrated square lattice”, *Physical Review B* **98**, 094402 (2018).
DOI: 10.1103/PhysRevB.98.094402
- ③ Shohei Hayashida, Hajime Ishikawa, Yoshihiko Okamoto, Tsuyoshi Okubo, Zenji Hiroi, Maxim Avdeev, Pascal Manuel, Masato Hagihara, Minoru Soda, Takatsugu Masuda, “Magnetic State Selected by Magnetic Dipole Interaction in Kagome Antiferromagnet $\text{NaBa}_2\text{Mn}_3\text{F}_{11}$ ”, *Physical Review B* **97**, 054411 (2018).
DOI: 10.1103/PhysRevB.97.054411
- ④ Yu-Chin Tzeng, Hiroaki Onishi, Tsuyoshi Okubo, and Ying-Jer Kao, “Quantum phase transitions driven by rhombic-type single-ion anisotropy in the $S=1$ Haldane chain”, *Physical Review B* **96**, 060404(R) (2017).
DOI: 10.1103/PhysRevB.96.060404

- ⑤ R. Okuma, T. Yajima, D. Hamane, T. Okubo, and Z. Hiroi, “*Weak ferromagnetic order breaking the threefold rotational symmetry of the underlying kagome lattice in $CdCu_3(OH)_6(NO_3)_2 \cdot H_2O$* ”, *Physical Review B* **95**, 095427 (2017).
DOI: 10.1103/PhysRevB.95.094427
- ⑥ T. Okubo, K. Shinjo, Y. Yamaji, N. Kawashima, S. Sota, T. Tohyama, M. Imada, “*Ground state properties of Na_2IrO_3 determined from ab initio Hamiltonian and its extensions containing Kitaev and extended Heisenberg interactions*”, *Physical Review B* **96**, 054434 (2017).
DOI: 10.1103/PhysRevB.96.054434

〔学会発表〕(計 44 件)

- ① 大久保毅, 「テンソルネットワーク法の開発とキタエフスピン液体への適用」, ポスト「京」重点課題 (7) 第4回シンポジウム, (2018).
- ② T. Okubo, “Tensor network study on Kitaev materials: Search for Kitaev spin liquid”, The 2nd Asia Pacific Workshop on Quantum Magnetism (APFM2018) (2018).
- ③ 大久保毅, 「フラストレートした正方格子ハイゼンベルグ模型における大きなスピン揺らぎと 1/2 磁化プラトー」, スピン系物理の最前線, (2018).
- ④ T. Okubo, “Tensor network quantum states and their application to quantum spin systems”, Interdisciplinary Workshop on Tensor Network, (2018).
- ⑤ T. Okubo “Tensor network study on Kitaev materials”, International Conference on Magnetism 2018 (ICM2018), (2018).
- ⑥ 大久保毅, 金子隆威, 山地洋平, 川島直輝, 「テンソルネットワーク法による非対角項のあるハニカム格子キタエフ模型の基底状態計算」, 日本物理学会第73回年次大会, (2018).
- ⑦ T. Okubo “Tensor network study on Kitaev materials”, Novel Quantum States in Condensed Matter 2017, (2017).
- ⑧ 大久保毅, 川島直輝, 「テンソルネットワーク法の量子スピン液体への適用」, ポスト京コンピュータ萌芽的課題1サブ課題D「量子力学と情報」研究会, (2017).
- ⑨ 大久保毅, 「テンソルネットワーク法のフラストレートスピン系への適用」, 日本物理学会第72回年次大会, (2017).
- ⑩ T. Okubo “Application of tensor network method to quantum spin systems”, Workshop on quantum dynamics and response, (2017).
- ⑪ 大久保毅, 「テンソルネットワーク法による $S=1/2$ カゴメ格子模型の磁化過程の研究」, Conference on Unusual Physics in Kagome Lattice, (2017).
- ⑫ T. Okubo “Ground state properties of Na_2IrO_3 determined from ab initio Hamiltonian”, Entanglement in Strongly Correlated Systems, (2017).
- ⑬ T. Okubo and N. Kawashima “Ground state properties of Na_2IrO_3 determined from ab initio Hamiltonian”, Fourth Workshop on Tensor network States: Algorithms and Applications, (2016).
- ⑭ T. Okubo and N. Kawashima “Magnetization process of kagome lattice Heisenberg antiferromagnets: 1/3 plateau state and effects of Dzyaloshinskii-Moriya interaction”, International Workshop on Tensor Networks and Quantum Many-Body Problems (TNQMP2016), (2016).

- ⑮ T. Okubo and N. Kawashima “Tensor network study on magnetization process of the kagome lattice Heisenberg antiferromagnets”, Trends in Theory of Correlated Materials 2016 (TTCM2016), (2016).
- ⑯ 大久保毅, 川島直輝, 「テンソルネットワークくり込みによる臨界指数と演算子積展開係数の計算」, 日本物理学会第71回年次大会, (2016).
- ⑰ T. Okubo and N. Kawashima “Ground state properties of frustrated honeycomb and kagome lattice antiferromagnets”, The 75th Okazaki Conference Tensor Network States: Algorithms and Applications 2016, (2016) .
- ⑱ T. Okubo and N. Kawashima “Tensor network study on magnetization process of kagome lattice Heisenberg antiferromagnets”, International USMM & CMSI Workshop: Frontiers of Materials and Correlated Electron Science -from Bulk to Thin Films and Interfaces, (2016).
- ⑲ 大久保毅, 川島直輝, 「テンソルネットワーク法による正方格子 J_1 - J_2 模型の基底状態相図」, 日本物理学会 2015 年秋期大会, (2016).
- ⑳ T. Okubo, “Tensor network methods in condensed matter physics”, Tensor network workshop — Field 2 x 5 joint workshop on new algorithms for quantum manybody problems —, (2015).

〔その他〕

ホームページ等

<https://exa.phys.s.u-tokyo.ac.jp/ja/members/okubo>

<https://researchmap.jp/TsuyoshiOkubo/>

6. 研究組織

※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、研究者個人に帰属されます。