

令和 6 年 6 月 17 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2023

課題番号：19K14645

研究課題名（和文）量子スピン液体における磁場励起ダイナミクスと輸送現象に関する数値的研究

研究課題名（英文）Numerical study on spin excitation and transport properties in quantum spin liquids

研究代表者

井戸 康太 (Ido, Kota)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：50827251

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：電子間に働く相互作用が強い強相関電子系において発現する量子スピン液体と、それらを取り扱う柔軟かつ高精度な多体波動関数法に関する研究を実施した。拡張Kitaevモデルや有機固体の第一原理有効ハミルトニアンといった量子多体系を解析することで、それらで発現する量子スピン液体の安定性や性質を理論的に明らかにした。また、強相関電子系における励起ダイナミクスを効率よく計算することができるよう手法開発も行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

低温になっても磁性を示さない非磁性絶縁体である量子スピン液体は、長距離にわたる強い量子もつれ構造を有するため、量子計算などの量子技術への応用が活発に議論されている。本研究課題では、こうした量子スピン液体がどのようにして安定になるのか、どのような性質なのかを高精度な数値計算結果に基づいて議論できた。得られた知見や開発した手法は、今回の研究で解析されなかった他の量子スピン液体の物性解析や新奇量子スピン液体物質の開拓、さらには超伝導体やトポロジカル物質といった多くの量子物質の解析へと繋がることが期待される。

研究成果の概要（英文）：Based on a many-body wavefunction method, we analyzed strongly correlated electron systems where quantum spin liquids emerge. By analyzing the extended Kitaev model and ab initio effective Hamiltonians for organic solids, we theoretically unveiled the stability of quantum spin liquids against external fields or many-body interactions, as well as their physical properties. We have also developed numerical methods for efficiently calculating excited states in strongly correlated electron systems.

研究分野：物性理論

キーワード：量子スピン液体 多体波動関数法 変分モンテカルロ法 励起スペクトル 輸送特性

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。

## 1. 研究開始当初の背景

従来の古典計算機では解決することの難しい問題に取り組める技術である量子計算を実現するため、強い量子もつれ構造を形成している量子スピン液体が注目されている。例えば、Majorana 粒子がスピン自由度の分数励起として創発する Kitaev 量子スピン液体は、環境ノイズに強い、安定した量子計算が実行できると考えられているトポロジカル量子計算機への応用が期待されている。量子計算を実現するためにも、量子スピン液体がどのように発現するのか、そしてどのような物性を示すのか、という観点での研究が世界的規模で急速に進展している。

Kitaev 量子スピン液体が発現する舞台として、イリジウム・ルテニウム化合物といったスピン軌道相互作用の強い強相関物質が理論的に提案されていた。こうした候補物質の基底状態は、Heisenberg 相互作用などの効果により量子スピン液体にはならず磁性絶縁体となってしまう。しかし、磁場を印加し磁性を壊すことにより、Majorana 粒子が発現していると示唆される実験結果が報告された。このような状況の中、量子スピン液体候補物質に関する理論研究は、実験結果を解釈するだけでなく、候補物質周辺で生じる新奇現象を予測するためにも有用であると考えられるが、相互作用や外場に対する量子スピン液体の安定性や輸送特性を高精度に理論解析することは困難であった。

## 2. 研究の目的

上述の背景の下、大きなシステムサイズの二次元量子多体系を取り扱える多体数値計算手法を開発・適用することで、量子スピン液体の磁場や多体相互作用に対する安定性や量子スピン液体の性質を明らかにすることを目的に研究を実施した。

## 3. 研究の方法

本研究では、最近接ボンド方向に依存した Ising 相互作用が働くハニカム格子上の Kitaev 模型と Heisenberg 相互作用等も含んだ拡張 Kitaev 模型における磁化過程を主な解析対象とした。また、量子スピン液体候補物質である有機固体 Pd(dmit)<sub>2</sub> 塩の第一原理ダウンフォールディング法により導出された有効ハミルトニアンも解析した。

高精度な理論解析を実施するために、本研究では変分モンテカルロ法(VMC)と呼ばれる手法を用いた。VMC は、試行波動関数を変分原理に従い最適化し、エネルギーや相関関数といった物理量の期待値をモンテカルロ法により評価する手法である。試行波動関数に多数の変分パラメータを導入することにより、大きなシステムサイズの強相関電子系を柔軟に解析できる。本研究では、従来の研究でよく用いられていた多体相関因子のある pair-product 波動関数だけでなく、その波動関数を拡張開発・実装することで、多体相関をより効率よく取り込んだ解析を実施した。

## 4. 研究成果

### (1)輸送・励起ダイナミクスのため多体波動関数手法の開発

VMC は幅広い系へ適用できる柔軟な多体数値計算手法であるが、主に基底状態を解析するために用いられてきた。基底状態の解析だけでは、中性子散乱や角度分解光電子分光などの実験で得られる励起スペクトルと直接比較することが難しいため、輸送特性や励起ダイナミクスを高精度に計算できるよう手法拡張が望まれている。実験との比較という観点だけではなく、量子スピン液体の性質を理論的に理解する上でも、励起スペクトルやトポロジカル輸送現象を解析できるよう手法拡張することは重要である。本研究では下記の2つの課題に取り組んだ。

励起スペクトルに関連した研究として、電荷(粒子密度)ゆらぎの情報を含んだ動的電荷構造因子を計算できるよう手法拡張に取り組んだ。我々は、先行研究で提案されていた VMC に基づいた部分空間法に着目した。動的電荷構造因子を効率よく表現する部分空間の基底として、我々は電子に粒子数密度を組み合わせた複合フェルミオンによる励起状態を提案した。強相関電子系の最も基本的な模型である Hubbard 模型を対象にベンチマーク計算を行った結果、粒子数密度と電子の複合化により、動的電荷構造因子の計算精度を大きく向上できることを明らかにした。

輸送ダイナミクスに関連した研究として、トポロジカル輸送現象に関連した多体 Chern 数を測定する手法開発に取り組んだ。Chern 数といったトポロジカル不変量は、相互作用のない系においては効率的な計算方法が提案され応用も進んでいるが、相互作用のある量子多体系においては現在も様々な提案がなされている。我々は、分極理論に基づいた多体 Chern 数の計算方法と VMC を組み合わせることにより、大きなシステムサイズにおいても効率よく多体 Chern 数を評価できる方法を提案した。本手法を伝導電子層と局在スピン層の接合系である近藤格子模型で現れる2つの絶縁体状態に適用した結果、1/2 フィリングにおいて現れる近藤絶縁体はトポロジカルに自明であるが、1/4 フィリングにおいて現れる非共面な磁気構造のある絶縁体は非自明な多体 Chern 数を持つことを明らかにした。

## (2) 拡張された Kitaev 模型で発現する量子スピン液体の解析

Kitaev 模型は、スピン自由度が分裂することで創発する Majorana フェルミオンや Jordan-Wigner(JW)変換によるフェルミオン(JW フェルミオン)を用いることで、基底状態を求める際には創発粒子の二次形式で表現できる。しかし、Heisenberg 相互作用や磁場などの項を考慮すると、元のハミルトニアンを二次形式で表現できなくなるので、高精度な解析を行うためには多体相関を考慮する必要がある。

我々は JW フェルミオン表現を用いて、磁場下における Kitaev 模型を解析した。試行波動関数には、JW フェルミオンによる一般化 Jastrow-BCS 波動関数を用いた。この試行波動関数は Kitaev スピン液体を厳密に表現できるだけでなく、JW フェルミオン間に働く長距離相関を Jastrow 因子により取り込むことが可能となっている。小さなシステムサイズでベンチマーク計算を行い、本試行波動関数が厳密解を高精度に再現できることを明らかにした。この試行波動関数を用いて、大きな二次元系における反強磁性 Kitaev 模型の磁化過程を解析した。磁気感受率の磁場依存性の結果から、平均場近似や密度行列繰り込み群法、厳密対角化法を用いた先行研究で示唆されていた Kitaev スピン液体と磁場誘起強磁性状態の間にある中間相が、本計算においても基底状態として現れることがわかった。また、JW フェルミオンの運動量分布が磁場印加によりどのように変化するかを解析した結果、Kitaev スピン液体と中間相では、Lifshitz 転移を想起させるトポロジカルに異なる運動量分布を示すことがわかった。

JW フェルミオン表現を用いることで Kitaev 模型における磁化過程を高精度に解析できたが、一般的な磁場方向や多体相互作用のある拡張 Kitaev 模型にこのアプローチを適用することは難しい。そこで我々は、量子スピン液体を解析する際に従来用いられていたスピノン間のペアリングが考慮された pair-product 状態を用いて、拡張 Kitaev 模型における磁化過程を解析した。複素フェルミオンであるスピノンは、スピノン間の線型結合をとることにより Majorana フェルミオンに変換できるため、スピノン表現を用いた試行波動関数でも Kitaev 模型の基底状態を厳密に表現できる。ペアリングの周期境界条件を適切に選択することにより、小さなシステムサイズでの拡張 Kitaev 模型における磁化過程を Heisenberg 極限での精度と同等の精度で解析できることを明らかにした。

## (3) 有機固体 Pd(dmit)<sub>2</sub> 塩の有効ハミルトニアンで発現する量子スピン液体の解析

カチオン分子で構成される二次元層と金属錯体 Pd(dmit)<sub>2</sub> で構成される二次元層が積み重なった有機固体である Pd(dmit)<sub>2</sub> 塩は、カチオン分子の種類を変えることによって多彩な性質を示す。特にカチオン分子が EtMe<sub>3</sub>Sb の場合には、量子スピン液体が実現していると考えられている。本研究では、量子スピン液体候補物質を含む 5 つの Pd(dmit)<sub>2</sub> 塩の第一原理有効ハミルトニアンを解析した。試行波動関数として、励起スペクトル計算で重要であった複合フェルミオンの考えを導入した複合 pair-product 状態と近年発展の著しいニューラルネットワーク相関因子を組み合わせたものを用いた。また、ニューラルネットワークによる系統的な精度改善と Lanczos 法を組み合わせたバリエーション外挿の技術を開発し、それを用いて磁性状態と量子スピン液体状態の相競争を調べた。その結果、実験で観測された基底状態と整合する結果を得ることに成功した。スピン相関関数やスピンドル重みを測定することで、得られた量子スピン液体ではスピン励起が一軸方向にギャップレスであることを明らかにした。多体波動関数から予測される平均場スペクトルを解析した結果、スピンの分数化によって創発したスピノンが二次元的なポイントギャップレス励起構造を持つことがわかった。このことは、スピンのギャップレス励起はスピノンの複合励起により生じていると解釈できる。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Ido Kota, Yoshimi Kazuyoshi, Misawa Takahiro, Imada Masatoshi	4. 巻 7
2. 論文標題 Unconventional dual 1D-2D quantum spin liquid revealed by ab initio studies on organic solids family	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 npj Quantum Materials	6. 最初と最後の頁 48
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41535-022-00452-8	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 該当する

1. 著者名 Ido Kota, Misawa Takahiro	4. 巻 101
2. 論文標題 Correlation effects on the magnetization process of the Kitaev model	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 45121
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.101.045121	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 Ido Kota, Imada Masatoshi, Misawa Takahiro	4. 巻 101
2. 論文標題 Charge dynamics of correlated electrons: Variational description with inclusion of composite fermions	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 75124
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.101.075124	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26件（うち招待講演 5件/うち国際学会 5件）

1. 発表者名 井戸康太、三澤貴弘
2. 発表標題 三角格子上の近藤格子模型で発現する多体トポロジカル状態
3. 学会等名 物性研究所スパコン共同利用・CCMS合同研究会「計算物質科学の現在と未来」
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Kota Ido, and Takahiro Misawa
2. 発表標題 Many-body topological insulator in the frustrated Kondo lattice model
3. 学会等名 34th IUPAP Conference on Computational Physics (CCP2023) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 井戸康太
2. 発表標題 量子凝縮系における励起状態のため数値シミュレーション
3. 学会等名 第16回材料系ワークショップ (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 井戸康太、三澤貴弘
2. 発表標題 多変数変分モンテカルロ法を用いた拡張Kitaエフ模型の解析 II
3. 学会等名 日本物理学会 第78回年次大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 井戸康太、三澤貴宏
2. 発表標題 三角格子上の近藤格子模型で発現する磁性トポロジカル絶縁体
3. 学会等名 日本物理学会 2023年春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Kota Ido
2. 発表標題 Ab initio study on Pd(dmit) <sub>2</sub> salts
3. 学会等名 Trends in the Theory of Quantum Materials 2023 (TTQM2023) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 井戸康太
2. 発表標題 機械学習・データ科学手法を活用した第一原理有効ハミルトニアン <sub>の</sub> 網羅的解析
3. 学会等名 物性研究所スパコン共同利用・CCMS合同研究会「計算の時代における物性科学」(招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 井戸康太, 三澤貴宏
2. 発表標題 三角格子上の近藤格子模型で発現する磁性トポロジカル絶縁体
3. 学会等名 日本物理学会 2023年春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 井戸康太, 三澤貴宏
2. 発表標題 多変数変分モンテカルロ法を用いた拡張Kitaエフ模型の解析
3. 学会等名 日本物理学会 2023年春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 井戸康太
2. 発表標題 高精度多体波動関数法に基づいた量子スピン液体候補物質dmit塩の網羅的解析
3. 学会等名 第2回「富岳」成果創出加速プログラム 研究交流会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Kota Ido
2. 発表標題 Variational Monte Carlo method for electron dynamics in strongly correlated systems
3. 学会等名 Integrated Spectroscopy for Strong Electron Correlation -Theory, Computation and Experiment (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Kota Ido
2. 発表標題 Comprehensive analysis on ab initio Hamiltonians of organic solids $\chi$ -X[Pd(dmit) <sub>2</sub> ] <sub>2</sub>
3. 学会等名 Integrated Spectroscopy for Strong Electron Correlation -Theory, Computation and Experiment (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 井戸 康太、吉見 一慶、三澤 貴宏、今田 正俊
2. 発表標題 階層的第一原理強相関電子状態計算法による有機固体X[Pd(dmit) <sub>2</sub> ] <sub>2</sub> の網羅的解析
3. 学会等名 シンポジウム・研究交流会「富岳百景」
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 井戸 康太
2. 発表標題 第一原理計算によるPd(dmit)2塩における量子スピン液体の安定性の解析
3. 学会等名 第8回HPCIシステム利用研究課題成果報告会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 井戸 康太
2. 発表標題 強相関第一原理手法を用いた有機固体DMIT塩の網羅的解析
3. 学会等名 第12回材料系ワークショップ
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 井戸 康太
2. 発表標題 強相関電子系における励起スペクトルのための手法開発とPd(dmit)2塩における基底状態の網羅的解析
3. 学会等名 「富岳」成果創出加速プログラム 物質・材料系課題 合同研究会プログラム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 井戸 康太
2. 発表標題 変分モンテカルロ法を用いた強相関電子系の励起状態計算法
3. 学会等名 量子物質の創発と機能のための基礎科学 シンポジウム-計算科学と実験科学が導く量子物質研究の最先端
4. 発表年 2022年



1. 発表者名 井戸康太
2. 発表標題 変分モンテカルロ法を用いた強相関電子系における動的構造因子の計算法
3. 学会等名 物性研究所スパコン共同利用・CCMS合同研究会「計算物質科学の新展開2020」(招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 井戸 康太, 吉見 一慶, 三澤 貴宏, 今田 正俊
2. 発表標題 Pd(dmit) <sub>2</sub> 塩の第一原理ハミルトニアンにおける量子スピン液体の安定性
3. 学会等名 日本物理学会 第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Kota Ido
2. 発表標題 Variational Monte Carlo method for excitation spectra in strongly correlated electron systems
3. 学会等名 Emergence and Functionality of Quantum Matter 2020 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 井戸康太、三澤貴宏
2. 発表標題 グランドカノニカルアンサンブルにおける多変数変分モンテカルロ法の開発と Kitaev 模型における磁化過程への応用
3. 学会等名 物性研究所スパコン共同利用・CCMS合同研究会「計算物質科学の新展開」
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 井戸康太, 今田正俊, 三澤貴宏
2. 発表標題 多変数変分モンテカルロ法を用いた動的構造因子の計算方法
3. 学会等名 日本物理学会 2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 井戸康太
2. 発表標題 多変数変分モンテカルロ法を用いた電荷動的構造因子の計算方法
3. 学会等名 計算物質科学人材育成コンソーシアム (PCoMS) シンポジウム & 計算物質科学スーパーコンピュータ事業報告会 2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 井戸康太
2. 発表標題 変分モンテカルロ法を用いた電荷動的構造因子の計算方法
3. 学会等名 基研研究会「電子相関が生み出す超伝導現象の未解決問題と新しい潮流」
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 井戸康太
2. 発表標題 多体波動関数法を用いた強相関電子系における動的構造因子の計算法
3. 学会等名 第9回「凝縮系理論の最前線」(招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 井戸康太, 三澤貴宏
2. 発表標題 変分モンテカルロ法で非対角相関を取り入れる新たな方法
3. 学会等名 日本物理学会 第75回年次大会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

有機固体で実現する量子スピン液体の特異な性質を解明  
<https://www.issp.u-tokyo.ac.jp/maincontents/news2.html?pid=15512>

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

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