

# 研究終了報告書

## 「量子トポロジカル磁性体のもつ素励起の時空間的制御」

研究期間：2019年10月～2023年3月

研究者：那須 讓治

### 1. 研究のねらい

磁性材料は、制御性や情報の不揮発性など多くの機能性を有しており、モーターや発電機、変圧器のみならず、ハードディスクなどの記憶媒体や、ファラデー回転を利用した光通信、そして磁気センサーなど現代のエレクトロニクスの発展を支える重要な基盤を提供している。一方で、これまでの磁性材料においては、磁化や透磁率など巨視的かつ古典的な性質に焦点が当てられている。電子の持つ電荷の自由度を活用したエレクトロニクスにおいては、トンネル効果などその量子性を生かしたデバイスが多く存在する一方、磁性の微視的起源となる電子スピンの量子性に関しては、これまで活用されることがほとんどなかった。磁性材料の持つ利点は、系がシンプルなモデルで記述されるのに加えて、その磁気的なエネルギースケールがフェルミエネルギーでスケールされる電子系に比べて非常に小さいことである。そのため、小さなエネルギーによってスピン状態を制御することが可能であり、デバイス動作が省エネルギーであると期待される。一方で、その状態を維持するエネルギーが低いことから、磁気的状態は熱揺らぎや不純物、外場等に起因した小さな擾乱に対して不安定となる。それを解決し温和な環境での動作を可能にするため、本研究では、波動関数の持つトポロジカルな性質に注目する。特に、相互作用のある量子スピン系における量子多体効果に由来する巨視的波動関数のトポロジカルな性質に焦点を当てる。強い量子揺らぎと相互作用によって極低温まで磁気秩序が抑制された量子スピン液体においては、量子ゆらぎが系全体に広がった巨視的波動関数で記述される。ここでは、長距離の量子エンタングルメントが存在することで波動関数が擾乱に対して堅牢性を獲得している。これは、波動関数を非局所的にしか特徴付けできないことを意味し、それはトポロジカルな性質に他ならない。この性質を反映して、素励起としてスピンの分裂して新しい粒子のように振る舞う分数準粒子が生じることが知られている。その準粒子としてマヨラナフェルミオンや非可換エニオンなどが提案され、分数準粒子の特徴である非局在性を利用した量子コンピューティングへの応用が近年活発に研究されている。これまでの研究では、分数準粒子を仮想的に移動させることで量子ゲートを構築する提案がなされている一方で、実際に準粒子を動かす方法に関してはほとんど議論されていないのが現状である。これらのことを踏まえ、本研究では、トポロジカルな性質を有する量子スピン液体で現れる特殊な素励起である分数準粒子を時間的および空間的に制御する方法を確立し、量子デバイスへの応用基盤を構築することを目的とする。

### 2. 研究成果

#### (1) 概要

本研究では、研究テーマ A「非一様系における実時間ダイナミクスを追跡する計算手法の確立」、B「量子スピン液体における準粒子の時空間的制御」、C「特徴的な統計性を有する準粒子の検証方法の提案」、および、本さがけ研究を通じて実現したさがけ内共同研究である

D「電気トロイダル秩序における準粒子励起に由来する非対角熱分極」などの成果が得られている。A では、本研究を遂行する最初の段階として、量子スピンの素励起の実時間ダイナミクスを追跡する計算手法を確立することを目的に研究を行った。特に、Kitaev量子スピン液体に注目して、この系において有効なマヨラナ粒子系に対する時間依存平均場法の非一様系への拡張を行い、さらに、より効率的な計算を実行するために、密度行列を利用した時間発展法を開発することで計算を高速化することに成功した。これを用いて、B では、Kitaev量子スピン液体に対する実時間シミュレーションとして、スピン輸送に注目し、マヨラナ粒子に由来したスピン輸送やバイズン励起による遍歴マヨラナ粒子の散乱現象などを明らかにした。また、バイズン励起に注目することで、それを局所的に制御する方法についても計算を行った。C に関しては、量子スピン液体において、スピンの分数化によって生じた準粒子であるマヨラナ準粒子とバイズン励起の持つ特徴的な統計性を反映した性質を実験的に検証する方法を提案することを目指し、Kitaev量子スピン液体に対する不純物効果やKitaev磁性体における熱ホール伝導度の磁場角度依存性の検証を行った。一方で、非可換エニオンの検証までには至ることができなかったため、それに関しては今後の課題である。研究テーマDに関しては、Cにおける準粒子が担う熱ホール伝導度の計算方法を発展させることで、強制的電気トロイダル秩序がある場合の特徴的な交差応答の解明を行った。

## (2) 詳細

### 研究テーマA「非一様系における実時間ダイナミクスを追跡する計算手法の確立」

ここでは、本研究を遂行する最初の段階として、量子スピンの素励起の実時間ダイナミクスを追跡する計算手法を確立することを目的に研究を行った。ここで注目するのは、量子力学の特徴である非局在性と波動関数のトポロジーを起源とした擾乱に強い素励起であり、その操作を演算要素として磁性材料におけるトポロジカル量子計算への応用を目指す。そのためには、非一様系に対する実時間発展を効率的に行う計算方法の確立が必須である。本研究ではまず、時間依存平均場法の非一様系への拡張を行い、その後、この方法を量子スピン液体で洗われる創発準粒子であるマヨラナ粒子系に対して効率的に行うことができる方法を開発した。

#### (i) 時間依存平均場法の非一様系への拡張

非一様系における実時間ダイナミクスを追跡する計算手法の確立を行うために、[JN and Y. Motome, Phys. Rev. Research **1**, 033007 (2019)]で開発した量子スピン液体に関する時間依存平均場法を非一様系に拡張した。この論文では、一様な磁場を急にゼロにした後の磁気状態の時間発展を計算していたが、本研究では、より複雑な時間依存性や、空間的な非一様性を取り入れた計算を行うため、波動関数を実空間で実時間シミュレーションを行うことができるような拡張を行った。

#### (ii) マヨラナ粒子系に対する効率的な時間発展法の開発

これまでの計算方法は、波動関数をシュレーディンガー方程式に基づいて直接時間発展を計算するものであった。ここでは、波動関数の時間発展ではなく、それと等価な密度行列に対する時間発展を追跡することでより効率的な実時間シミュレーションを行うことに成功した。シュレーディンガー方程式に基づいた波動関数の時間発展においては、離散化された各時刻において、ハミルトニアンを対角化が必要になり、それが実空間での数値計算の最大の問題であった。一方で、密度行列が従う時間発展方程式はフォンノイマン方程式であり、ここではハミ

ルトニアンと密度行列との行列積が評価できればよい。本研究では、Kitaef量子スピン液体における準粒子励起がマヨラナ粒子で書くことができること活用し、またハミルトニアンが疎行列であることを用いることで行列積計算を高速化して、実空間でのサイズが大きい場合でも効率的な計算が可能になるように計算プログラムを最適化した。

## 研究テーマ B「量子スピン液体における準粒子の時空間的制御」

ここでは、研究テーマ A の内容を用いて、Kitaef量子スピン液体に対して、実際に準粒子の実空間で非一様性がある系に対して、実時間シミュレーションを行った。Kitaef量子スピン液体においては、量子スピンは系を遍歴するマヨラナ粒子と局在するバイゾン励起の 2 種類の準粒子励起へと分裂したかのように振る舞う分数化現象が現れる(図 1)。本研究では、まずバイゾン励起が存在しない低温における遍歴マヨラナ粒子に由来したスピン輸送に注目し、さらに、バイ

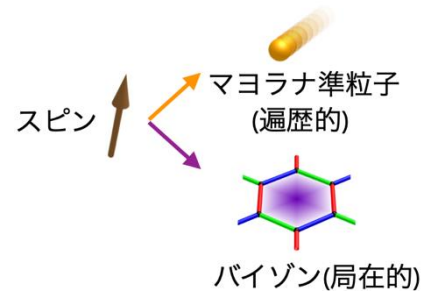


図 1 スピンの分数化現象。

### (i) マヨラナ粒子に由来したスピン輸送

Kitaefモデルにおいては、スピン相関は最近接のみ有限でそれ以外はゼロであるという超短距離のスピン相関を持つ量子スピン液体が実現している。これまで磁性絶縁体のスピン輸送は、磁気秩序下でのマグノンや 1 次元系のスピノンなどの準粒子によるものがほとんどであり、これらでは、長距離もしくは準長距離のスピン相関を有する。一方で、Kitaefスピン液体では、スピン相関が短距離であるため、長距離のスピン輸送は自明ではない。しかしながら、スピンの分数化によって生じた創発マヨラナ準粒子はギャップレスであるため、これを用いた長距離スピン輸送の可能性を探索した。ここでは、量子スピン液体を 2 つの磁性体で挟んだときに、片方の磁性体からスピン注入を行い、もう片方でそのスピン励起を観測するという状況を考えて。それを簡単化するために、Kitaefスピン液体の片側に時間依存するパルス磁場を印加して、その実時間発展を「研究テーマ A」で開発した手法を用いて計算した。その結果、片側から入力したスピン励起は、もう片側に伝搬し、磁化変動を生じさせることがわかった。驚くべきことに量子スピン液体中を伝搬する過程で磁化変動が全く生じない。詳しい解析によって、このスピン輸送はマヨラナ準粒子によって担われていることが明らかとなった。マヨラナ準粒子はギャップレスであるため、長距離のスピン輸送が可能であり、また途中で磁化変動を生じさせないため、散逸を伴わないスピン輸送が可能であることを示唆する結果となっている[T. Minakawa, Y. Murakami, A. Koga, and JN, Phys. Rev. Lett. 125, 047204-1-7 (2020)]。

### (ii) バイゾン励起による遍歴マヨラナ粒子の散乱現象

(i)では遍歴マヨラナ粒子にのみ注目した結果であるが、もう一つの準粒子であるバイゾン励起もスピン輸送に影響することが期待される。バイゾン励起は、電磁気学でいう磁束に対応し、それによって生じるベクトルポテンシャルをマヨラナ準粒子が感じるため、マヨラナ準粒子の輸送特性を通じて「バイゾン励起」の「ベクトルポテンシャル」を観測できるのではと考えた。バイゾ

ン励起がある場合のスピンの輸送を調べてみると、その代わりに格子欠陥を導入した場合と比較して、大幅に強くマヨラナ準粒子が散乱を受けることを発見した。この結果はマヨラナ準粒子がバイズン励起の周りのベクトルポテンシャルをうけることで量子干渉が生じることを意味している。この干渉効果は、スピン輸送における空間依存性として観測できることを示した[JN, Y. Murakami, and A. Koga, Phys. Rev. B **106**, 024411-1-15 (2022)]。

### (iii) バイズン励起の局所制御

キタエフスピン液体に磁場を印加したとき、創発マヨラナ準粒子系はトポロジカルに非自明なバンド構造を示し、それに伴って、エッジモードが生じる。さらにバイズン励起がある場合には、バイズン励起にマヨラナゼロモードが付随することも知られている。このマヨラナゼロモードを伴ったバイズン励起は、非可換エニオンとして振る舞うため、これを観測、制御、生成することが、トポロジカル量子計算を実現するために重要である。これまで、バイズン励起の観測方法として、STM を用いた方法の理論提案が行われているが、制御方法に関してはほとんどわかっていない。本研究では、時空間的に変動する局所磁場によってマヨラナゼロモードを伴ったバイズン励起の制御が制御可能かを調べるために、研究テーマ A の方法を用いて計算を行った。そこで発展させたマヨラナ準粒子系の密度行列を用いた時間発展に加えて、マヨラナ準粒子系のハミルトニアンを Schur 分解によって計算することで、ゼロモードがある場合にも安定して時間発展を評価できるように数値計算を工夫した。その結果、局所磁場を移動させることでバイズン励起がほぼ完全にそれに追従することを発見した。これはバイズン励起が局所磁場で制御可能であることを示唆する計算結果である[C. Harada, A. Ono, and JN, arXiv:2305.08357]。これを用いることで、バイズン励起のブレーディングを行うことができることが期待されるが、それを実時間ダイナミクスとして検証することは今後の課題である。

## 研究テーマ C「特徴的な統計性を有する準粒子の検証方法の提案」

ここでは、量子スピン液体においてスピンの分数化によって生じた準粒子であるマヨラナ準粒子とバイズン励起の持つ特徴的な統計性を反映した性質を実験的に検証する方法を提案することを旨とする。

### (i) キタエフ量子スピン液体に対する不純物効果

キタエフ量子スピン液体においては、バイズン励起の他に、不純物や乱れを導入することでマヨラナ準粒子の特徴であるゼロエネルギー状態を生み出すことができると期待されている。それを実験的に検証するためには、有限温度における観測量として理論計算を行うことが必要である。ここでは、キタエフスピン液体に対して格子欠陥などの乱れを導入し、それによって熱輸送特性や磁気励起、ラマン散乱スペクトルがどのように変調を受けるかを調べた。その結果、乱れの導入に伴うゼロエネルギー状態の発生によって、磁気励起に低エネルギーピークが現れる。それに伴って磁化率に低温でべき的な増加が見られる[JN and Y. Motome, Phys. Rev. B **102**, 054437-1-6 (2020), Phys. Rev. B **104**, 035116-1-17 (2021).]。さらにラマン散乱に準弾力的なピーク構造が温度上昇に伴って発達することを発見した。

### (ii) キタエフ磁性体における熱ホール伝導度の磁場角度依存性の検証

キタエフ候補物質において、熱ホール伝導度がマヨラナエッジモードの存在を示唆する半整数での量子化現象が観測されて以降、量子化や熱輸送担う準粒子に関して、検証の余地があることが国内外の研究グループで議論されている。フェルミ粒子である創発マヨラナ粒子と、

ボース粒子であるマグノンやフォノンとではトポロジカルな性質が異なるため、本研究では、準粒子の統計性がどのように物理量の違いに表れるかを検証することを目的とした。特に、熱輸送がマグノンによって担われる場合に熱ホール伝導度を計算する一般的な枠組みを構築して、それを用いた計算を実行し、フェルミ粒子的な準粒子の場合との違いを調べた。磁場角度を変えて起こるチャーン数の切り替わりにおいて、マグノンの励起ギャップは閉じずに開いたままであることを示し、それが準粒子をフェルミ粒子と考えた場合と大きく異なることを示した[S. Koyama and JN, Phys. Rev. B **104**, 075121 (2021)]。逆に、ギャップが閉じる場合には準粒子がフェルミ粒子的であることを示しており、このことは、キタエフ候補物質における熱ホール伝導度[T. Yokoi et al., Science **373**, 568 (2021)]と比熱測定[O. Tanaka et. al., Nat. Phys. **18**, 429 (2022)]の実験結果と矛盾しないものとなっている。

#### 研究テーマ D「電気トロイダル秩序における準粒子励起に由来する非対角熱分極」

研究テーマ C の(ii)で発展させた磁気秩序からの準粒子が担う熱輸送特性の計算に関する一般的な取り扱い方法を発展させることで、電気トロイダル秩序がある場合の特徴的な交差応答を解明した。計算の結果、電気トロイダル秩序が生じた場合には、温度勾配に対して垂直方向に電気分極が誘起されることがわかった。この応答テンソルは成分に対して反対称であるという特徴を有する。この反対称熱分極の応答係数は、臨界温度近傍で大きな値となり、これは低エネルギーの準粒子が存在することが原因であることを明らかにした。この研究は、本さがけ三期生の速水賢氏とのさがけ内の共同研究である[JN and S. Hayami, Phys. Rev. B **105**, 245125 (2022)]。

### 3. 今後の展開

本研究計画では、量子トポロジカル磁性体の持つ特殊な統計性を有する準粒子の性質を明らかにし、それらを時間的・空間的に外場によって制御する方法を明らかにすることを主要な研究テーマに据えていた。特にキタエフ量子スピン液体に注目したとき、スピンの分数量化現象によって生じたバイズン励起には、磁場を印加したときにマヨラナゼロモードが付加し、それが非可換エニオンとなる。これを実空間において、時間軸対して「編み込み」を行うことで、組紐理論に基づいたいわゆるトポロジカル量子計算が可能となる。演算要素が準粒子の入れ替えというトポロジカルな性質に由来しているため、擾乱に強く、耐障害性を持つことが知られており、汎用的な量子コンピュータの有望な実装である。現在、量子計算においては、D-wave に代表される量子アニーリング方式や、量子ドットなどを用いた量子ゲート作成など様々な方向からその実装が研究されている。そこでは、計算の汎用性や安定性など様々な問題が残されているが、トポロジカル量子計算が実装できれば、それらの問題を根本から解決できる可能性を秘めている。本研究では、新たに開発した非一様系での時間発展法を適用することで、バイズン励起を実時間で制御できるという計算結果を得ている。まずは、これを実際に行うことができる実験的セットアップを提案し、本研究で得られた理論計算の結果を検証することが必要である。その後、それを用いて、量子計算に必要な編み込みが可能であるかを検討し、トポロジカル量子計算が実装基盤を確立していくことが、今後の展開として期待される。

#### 4. 自己評価

本研究では、研究計画時には、1)非一様系における実時間ダイナミクスを追跡する方法の確立、2)量子トポロジカル磁性体が持つ素励起の時空間制御、3)特徴的な統計性の検証方法の提案、4)トポロジカル磁性材料の理論提案を目的に研究を開始した。1)および 2)に関しては、Kitaev量子スピン液体の非一様系に対する実時間計算として、スピン液体中の磁化振動伝搬[T. Minakawa, Y. Murakami, A. Koga, and JN, Phys. Rev. Lett. **125**, 047204 (2020)]、スピン液体接合系のスピン伝搬[H. Taguchi, Y. Murakami, A. Koga, JN, Phys. Rev. B **104**, 125139 (2021)]、バイズン励起と不純物での散乱の差異[J. Nasu, Y. Murakami, A. Koga, Phys. Rev. B **106**, 024411 (2022)]、バイズン励起の局所制御[C. Harada, A. Ono, J. Nasu, arXiv:2305.08357]などの研究成果が得られており、ほぼ当初の計画通り達成できたと考えている。3)の準粒子の統計性の検証方法の提案に関しては、Kitaev量子スピン液体に乱れを導入したときに現れるマヨラナ性を反映したゼロモードに由来した熱輸送特性[JN and Y. Motome, Phys. Rev. B **102**, 054437 (2020)]や磁化率の臨界的な振る舞い[JN and Y. Motome, Phys. Rev. B **104**, 035116 (2021)]などの計算結果を得ることができた。しかしながら、2)のマヨラナゼロモードを伴うバイズン励起を制御して、交換による波動関数の変調など、非可換エニオンの検証には至ることができなかった。また、4)量子トポロジカル磁性材料に提案に関しては、いくつか試したものの、新しいタイプの磁性材料を提案することができなかったため、それらは今後の課題として残されている。

研究成果の科学技術および社会・経済への波及効果に関しては、マヨラナ準粒子によるスピン輸送に関する成果(PRL2020)は JST と共同プレスリリースを行っている。また、本研究で得られたマヨラナゼロモードを伴うバイズン励起の局所制御の研究を今後発展させて、複数のバイズン励起を実時間で交換する方法や条件を確立できれば、Kitaev磁性体におけるトポロジカル量子計算の実装基盤を構築できると考えている。これは、磁性材料を用いた新しいタイプの量子計算の舞台であり、社会・経済にも波及効果が期待できる。

当初の計画では想定されていなかった展開やそれによる成果としては、磁性絶縁体におけるトポロジカル準粒子の有限温度における寿命を考慮した計算手法の開発を行い、フェルミ粒子的・ボース粒子的な準粒子の違いやホール応答への影響を調べたことと、速水賢氏とのさきがけ内共同研究を行うことで強電気トロイダル秩序(フェロアキシャル秩序)における新しいホールの熱応答の提案とこの秩序の同定方法を提案したことを挙げる事ができる。

#### 5. 主な研究成果リスト

##### (1) 代表的な論文(原著論文)発表

研究期間累積件数: 13件

##### 1. T. Minakawa, Y. Murakami, A. Koga, and J. Nasu, "Majorana-Mediated Spin Transport in Kitaev Quantum Spin Liquids", Phys. Rev. Lett. **125**, 047204-1-7 (2020)

Kitaev量子スピン液体においては、スピン相関が短距離であり長距離のスピン輸送が生じることは自明ではない。本研究では、片側の端に時間依存する磁場を印加することでスピン注入を行い、それによってもう片側にスピン変動が生じることを、実時間シミュレーションを行うことで発見した。詳しい解析により、スピン輸送が、量子スピンの分数化して生じたマヨラナ準粒子

が担うことがわかった。マヨラナ準粒子はギャップレスであるため、スピン相関からの予想に反して、長距離のスピン輸送が可能である。

2. J. Nasu and Y. Motome, "Spin dynamics in the Kitaev model with disorder: Quantum Monte Carlo study of dynamical spin structure factor, magnetic susceptibility, and NMR relaxation rate", *Phys. Rev. B* **104**, 035116-1-17 (2021)

キタエフ模型においては、不純物や乱れを導入することで、その周りに創発マヨラナ準粒子の特徴を反映したゼロエネルギー状態が生じることが指摘されている。本研究では、実際にこのマヨラナ準粒子の特徴がどのように巨視的観測量や励起スペクトルに表れるのかを明らかにすることを目的に、特に磁気励起スペクトルに対する有限温度計算を実行した。その結果、乱れに導入に伴って表れる低エネルギー励起の存在によって、動的スピン構造因子に準弾性的な構造が発達することと、磁化率が低温で冪的に発散する振る舞いが現れることを発見した。本論文は、*Phys. Rev. B* の Editors' suggestion に選ばれている。

3. J. Nasu and S. Hayami, "Antisymmetric Thermopolarization by Electric Toroidicity", *Phys. Rev. B* **105**, 245125-1-11 (2022)

近年、新しいタイプの強制的秩序である電気トロイダル秩序が注目を集めているが、それと結合する外場の少なさから、電気トロイダル秩序の実験的検証方法に関しては発展途上である。本研究では、温度勾配によってそれを同定することを目的に研究を行った。線形応答理論を用いた計算の結果、温度勾配によって、それと垂直な方向に電気分極が生じることが明らかになった。また、それを特徴付ける応答テンソルが、反対称である新しいタイプの非対角の熱分極であることを見いだした。この研究は、本さきがけ内の共同研究である。

## (2) 特許出願

なし

## (3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

1. 招待講演: 韓国物理学会 KPS Fall Meeting (2020年11月4-6日)
2. 招待講演: 米国物理学会 APS March Meeting (2022年3月14-18日)
3. 招待講演: 11th International Conference on Highly Frustrated Magnetism 2022 (HFM22) (2022年6月20-25日)
4. 受賞: 第15回凝縮系科学賞 (2020年12月4日)
5. プレスリリース: 「マヨラナ粒子が媒介するスピン輸送現象の発見」(2020年7月28日)
6. プレスリリース: 「量子コンピューターのワイルドカードとなる粒子を解明」(2021年08月2日)