

磁気単極子秩序形成の基底状態解析

奥村 駿

東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻

1. はじめに

物性物理学の分野では、多くの電子が集まってあたかも一つの粒子のように振る舞う複合準粒子が精力的に研究されている。この複合化は、電子の持つ電荷・スピン・軌道といった自由度が強く相互作用することで現れる量子多体効果のひとつであり、長年にわたって強相関電子系における中心的な研究対象となっている。近年では、磁性体において磁気スキルミオンと呼ばれる渦状の磁気構造が実験的に観測されたことを皮切りに、スピン自由度に着目した複合準粒子の研究が盛んに行われてきた。磁気スキルミオンは2次元の面で定義される磁気構造であり、非自明なトポロジーによって保護されているため、渦の一つ一つが粒子的に振る舞うことが知られている[1]。また、3次元のトポジカル磁気構造の例としては、本研究で取り扱う**磁気単極子**が挙げられる。磁気単極子は真空中では存在し得ないとされる一方で、物質中においては、**磁気ヘッジホッグ**と呼ばれる特異な磁気テクスチャの生み出す**創発磁場**を考えることによって実効的に存在しうる。この磁気単極子は3次元方向に積層された磁気スキルミオンが成す弦の端点に現れる点欠陥としても考えることができる[図1]。

磁気ヘッジホッグが周期的に並んだ構造は**磁気ヘッジホッグ格子**と呼ばれ、主に空間反転対称性の破れたキラルな磁性体において調べられている。とりわけ、B20型の結晶構造をもつMnGeでは、3つの波数で特徴づけられる磁気ヘッジホッグ格子(3Q-HL)が低温かつゼロ磁場で観測されている[2]。この3Q-HLでは、非共面的なスピントクスチャの生み出す創発磁場が磁気単極子と反磁気単極子の対を形成し、**トポジカルホール効果**などの特異な量子輸送現象を引き起こす[3]。また、同様の結晶構造をもつMnSi_{1-x}Ge_xにおいて、4つの波数で特徴づけられる磁気ヘッジホッグ格子(4Q-HL)が発見されている[4]。さらに、キラルな磁性体だけではなく、空間反転対称性があるSrFeO₃という物質においても4Q-HLが観測されており[5]、トポジカルホール効果を示すことが知られている[6]。これらの3次元の磁気テクスチャは、非常に短い磁気周期を持つことから高密度の不揮発性磁気メモリとしての応用が期待されているが、その安定性については未解明な点が多く残されている。

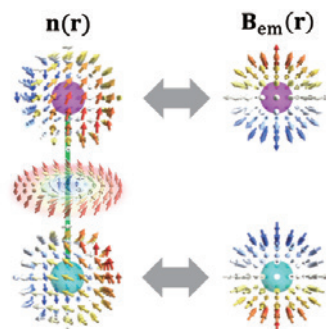


図1: 電子スピン $\mathbf{n}(\mathbf{r})$ で表される磁気ヘッジホッグ(左上)と反磁気ヘッジホッグ(左下)が磁気スキルミオンの弦で繋がれている。創発磁場 $\mathbf{B}_{em}(\mathbf{r})$ で書き表すとそれぞれ磁気単極子(右上)と反磁気単極子(右下)とみなすことができる。

2. これまでの研究

磁気ヘッジホッグ格子に関する理論研究は、磁気スキルミオン格子の発見以前から長年の間続けられてきた。キラルな磁性体においては、現象論的なGinzburg-Landau理論[7]から3Q、4Qのい

ずれのヘッジホッグ格子も基底状態として安定化することが予言されていたが、微視的な安定化機構を与えてはいない。また、局在スピン模型を用いた変分計算[8]やモンテカルロ法による数値計算[9]では、4Q-HLのみが磁場中においてだけ安定化することが見出されているが、MnSi_{1-x}Ge_xにおいて3Q-HLと4Q-HLの両方がゼロ磁場で安定に存在するという実験事実が説明できていない。さらに、連続体近似を用いて、磁気単極子と反磁気単極子の磁場中での振る舞いも調べられているが[10]、現実には磁気周期が格子定数の数倍程度と短いため、離散的な格子の影響を取り込んだ解析が必要と考えられる。このように、従来の理論では3次元的な磁気単極子秩序の発現や振る舞いを十分に説明できていなかった。

そこで我々は、対象とする物質が金属的な性質を持つことに着目し、従来の研究では注目されていなかった遍歴電子の効果とスピン軌道相互作用を取り入れた有効スピン模型の解析を行ってきた。これまでの研究では、空間反転対称性が破れたキラルな系に着目し、後述の焼きなまし法による数値シミュレーションを行うことによって、ゼロ磁場での基底状態において3Q-HLや4Q-HLが発現しうることを見出した[図2]。また、それぞれの場合について基底状態相図を解明することにより、短周期の磁気ヘッジホッグ格子の安定化には伝導電子が媒介するRuderman-Kittel-Kasuya-Yosida(RKKY)相互作用だけではなく、高次のスピン電荷結合による双二次相互作用や、スピン軌道結合によるDzyaloshinskii-Moriya(DM)相互作用が重要であることを明らかにした[11]。本研究では、これまでの計算を発展させ空間反転対称性がある場合にも拡張することで、より広い物質群に対する磁気単極子の設計指針を与えることを目的としている。

3. 模型・手法

本研究ではこれまでの研究[11]と同様な立場で、スピン電荷結合を通じて電子の持つ遍歴性を取り込んだ以下の模型から出発する。

$$H = \sum_{\mathbf{k}\sigma} (\epsilon_{\mathbf{k}\sigma} - \mu) c_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger c_{\mathbf{k}\sigma} - J_K \sum_{\mathbf{k}\mathbf{q}\sigma\sigma'} c_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger \boldsymbol{\sigma}_{\sigma\sigma'} c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma'} \cdot \mathbf{S}_{\mathbf{q}} - \sum_l \mathbf{h} \cdot \mathbf{S}_{\mathbf{r}_l}$$

ここで、 $c_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger$ ($c_{\mathbf{k}\sigma}$)は波数 \mathbf{k} とスピン σ をもった遍歴電子の生成(消滅)演算子であり、第1項の $\epsilon_{\mathbf{k}\sigma}$ は飛び移り積分を含むエネルギー分散、 μ は占有電子数に関する化学ポテンシャルである。第2項はスピン電荷結合を表す。 $\boldsymbol{\sigma} = (\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z)$ は遍歴電子のスピンを表す 2×2 のパウリ行列、 $\mathbf{S}_{\mathbf{q}} = (S_q^x, S_q^y, S_q^z)$ は古典的な局在磁気モーメントのフーリエ成分であり、それらが定数 $J_K > 0$ で結合している。第3項は外部磁場 \mathbf{h} と位置 \mathbf{r}_l の局在磁気モーメント $\mathbf{S}_{\mathbf{r}_l}$ が結合したゼーマン項である。

一般に、遍歴電子系のエネルギーを厳密対角化法で求めるためには、サイト数 N に対し $O(N^3)$ の計算コストを要するため、そのままの取り扱いでは3次元的な周期的構造を持った磁性の解析

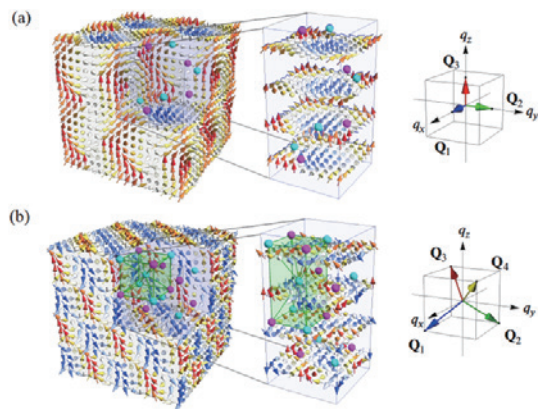


図2: (左) 焼きなまし法によって得られたゼロ磁場での(a)3Q-HL、(b)4Q-HLのスピン構造[11]。桃色(水色)の球は図1の(反)磁気ヘッジホッグに対応し、矢印の色はスピンの z 成分を表す。(中)磁気単位胞の拡大図。(右)それぞれの磁気構造を特徴づける3つまたは4つの波数ベクトル。

は困難である。そこで本研究では、スピン電荷結合 J_K に対する摂動計算を行うことで、近似的に遍歴電子系の効果を取り入れた以下の有効スピン模型を考える。

$$H_{\text{eff}} = 2 \sum_{\eta} \left[-J \mathbf{S}_{\mathbf{Q}_{\eta}} \cdot \mathbf{S}_{-\mathbf{Q}_{\eta}} + \frac{K}{N} (\mathbf{S}_{\mathbf{Q}_{\eta}} \cdot \mathbf{S}_{-\mathbf{Q}_{\eta}})^2 \right] - \sum_l \mathbf{h} \cdot \mathbf{S}_{\mathbf{r}_l}$$

第1項は J_K についての二次摂動から導出される、波数空間での双線形相互作用である。これはRKKY相互作用とも呼ばれ、空間変調された周期的な磁気構造を安定化させる。第2項は J_K の四次で与えられる4スピン間の双二次相互作用で、スピンの波の重ね合わせを誘起する。以下では、 $J > 0$ 、 $K > 0$ とする。また、ここでは波数 \mathbf{q} について、伝導電子のフェルミ面におけるネスティングベクトル以外の寄与は無視することとし、図2(b)の右下に表されているような4つの波数 \mathbf{Q}_{η} のみに限定している。これらの近似によって、系のエネルギーを求めるために必要な計算コストは $O(1)$ となり、システムサイズ N に依存しなくなる。また、基底状態は必ず波数 \mathbf{Q}_{η} の周期性を持ったスピン配置となるため、システムサイズは各方向に1つ分の磁気周期を含む $N = (2\pi/|\mathbf{Q}_{\eta}|)^3$ を考えれば十分である。さらに、この模型はスピン空間で等方的であるため磁場 \mathbf{h} の向きに依らず、 $\mathbf{h} = (h, h, h)/\sqrt{3} \parallel \mathbf{Q}_4$ として一般性を失わない。

上の有効スピン模型 H_{eff} の基底状態を求めるために、数値的焼きなまし法を用いた計算を行った。まず、ランダムな初期状態を用意し、うち1つのスピン $\mathbf{S}_{\mathbf{r}_l}$ を適当な方向に回転させたベクトルを $\mathbf{S}'_{\mathbf{r}_l}$ とする。そのとき、系全体の新しいエネルギー E' は

$$E' = 2 \sum_{\eta} \left[-J \left\{ \mathbf{S}_{\mathbf{Q}_{\eta}} + (\mathbf{S}'_{\mathbf{r}_l} - \mathbf{S}_{\mathbf{r}_l}) e^{-i\mathbf{Q}_{\eta} \cdot \mathbf{r}_l} \right\} \cdot \left\{ \mathbf{S}_{-\mathbf{Q}_{\eta}} + (\mathbf{S}'_{\mathbf{r}_l} - \mathbf{S}_{\mathbf{r}_l}) e^{i\mathbf{Q}_{\eta} \cdot \mathbf{r}_l} \right\} \right. \\ \left. + \frac{K}{N} \left(\left\{ \mathbf{S}_{\mathbf{Q}_{\eta}} + (\mathbf{S}'_{\mathbf{r}_l} - \mathbf{S}_{\mathbf{r}_l}) e^{-i\mathbf{Q}_{\eta} \cdot \mathbf{r}_l} \right\} \cdot \left\{ \mathbf{S}_{-\mathbf{Q}_{\eta}} + (\mathbf{S}'_{\mathbf{r}_l} - \mathbf{S}_{\mathbf{r}_l}) e^{i\mathbf{Q}_{\eta} \cdot \mathbf{r}_l} \right\} \right)^2 \right] - \sum_l \mathbf{h} \cdot (\mathbf{S}'_l - \mathbf{S}_l)$$

のように局所的な変更のみで求められる。この E' と回転前のエネルギー E の差に対し、標準的なメトロポリス法を用いて詳細つり合いを満たすようにスピン $\mathbf{S}_{\mathbf{r}_l}$ を更新していく。システムサイズのみでこの操作を繰り返すことを1回のモンテカルロスイープとすると、1モンテカルロスイープあたり $O(N)$ の計算コストでスピン配置を更新することが可能となる。元々の遍歴電子系を厳密対角化法によって直接取り扱う場合には、1モンテカルロスイープあたり $O(N^4)$ の計算コストがかかるため、有効スピン模型を用いるほうがはるかに効率的である。

焼きなまし法では、基底状態を求めるために高温の状態から徐々に温度 T を下げていく。本研究では、初期温度を $T_0 = J$ とし、 10^4 モンテカルロスイープ毎に $T_n = 10^{-0.1n} J$ として温度を変化させていった。これを各ランダムシードにおいて $n = 50$ まで繰り返し、もっともエネルギーが低いスピン配置を基底状態として採用した。以下の計算では、エネルギー単位を $J = 1$ とし、システムサイズは $N = 16^3$ ($|\mathbf{Q}_{\eta}| = 2\pi/16$)とした。

4. 計算結果

上記の有効スピン模型 H_{eff} に対して焼きなまし法を行うことで得られた基底状態相図を図3に示す。まず、ゼロ磁場($\mathbf{h} = 0$)において、双二次相互作用 K がないときには双線形相互作用 J の効果によって最も基本的ならせん磁性相(1Q-H)が現れる。有限の $0 < K \lesssim 0.13$ においては、それぞれ異なる方向に伝搬するらせん波と正弦波を重ね合わせた2Q chiral stripe相(2Q-CS)が見られる。

さらに、より大きな $K \geq 0.13$ の領域では、本研究の目的である $4Q$ -HL 相が安定化することがわかる。図4 (a)に示すように、この $4Q$ -HL 相は4方向に伝搬するらせん波の重ね合わせによって実現しており、磁気単位胞内に8つずつの磁気ヘッジホッグ・反磁気ヘッジホッグを有する。この計算結果は、一般の周期 $|Q_\eta|$ をもった磁気ヘッジホッグ格子が空間反転対称な系においても安定化しうることを初めて示したものである[12]。

$4Q$ -HL に外部磁場を印加すると、 $K \geq 0.19$ においては、すべてのらせん面が磁場と垂直な方向に揃った $4Q$ コニカル磁性相($4Q$ -C I)[図4 (b)]が見れる。このときの相転移は一次転移となっているが、すべての磁気ヘッジホッグ・反磁気ヘッジホッグが一斉に消滅するトポロジカル転移とみなすこともできる。また、 $K \leq 0.19$ にお

いては、 $4Q$ -HL 相は図4 (c)、(d)のような中間相を経たのち、 $1Q$ コニカル磁性相($1Q$ -C)[図4 (e)]に移り変わる。同様に $2Q$ -CS 相[図4 (f)]や $1Q$ -H 相も磁場中で $1Q$ -C 相に転移する。最終的には、 K の値によらずすべての状態が $h = 2$ で自明な強制強磁性相へと連続的に移行する。

キラルな系における先行研究[11]では、空間反転対称性の破れに由来するDM 相互作用が磁気異方性の役割を果たすため、磁場方向に依存した非常に複雑な相図が得られていた。本研究では、各相のスピンの配置について、磁場依存性を含めた網羅的な解析を行うことができた。一方で、キラルな系では磁場下において有限となっていた創発磁場が、等方的な系では全体で打ち消し合うという結果が得られた。これは、キラルな系では4つのらせんのキラリティが一様に定まるが、空間反転対称な系では右巻きと左巻きのらせんが同じ割合で存在するためと考えられる。

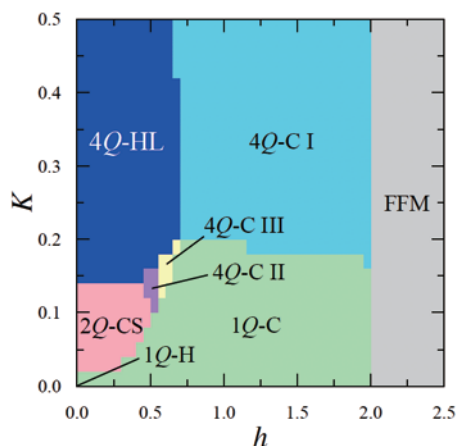


図3：空間反転対称な系の有効スピン模型 H_{eff} における双二次相互作用 K と外部磁場 h の基底状態相図。青い領域で $4Q$ -HL が安定的に存在している。

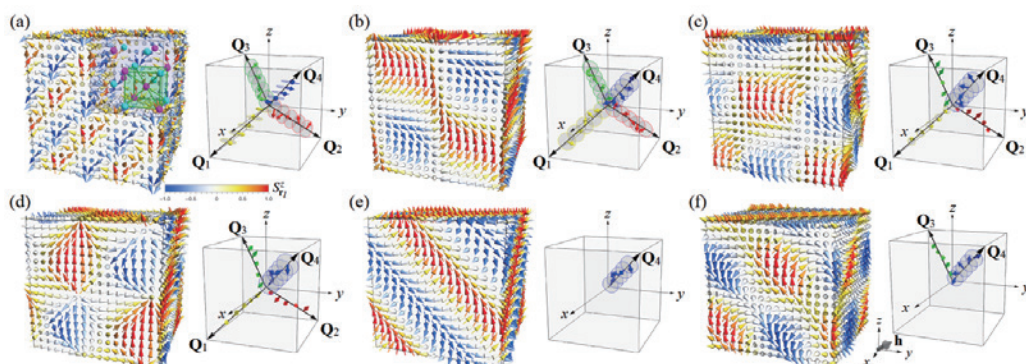


図4：各状態のスピンの配置(左)とそれを構成するスピンの波(右)。(a) $4Q$ -HL ($K = 0.3, h = 0$)、(b) $4Q$ -C I ($K = 0.3, h = 1$)、(c) $4Q$ -C II ($K = 0.14, h = 0.5$)、(d) $4Q$ -C III ($K = 0.14, h = 0.6$)、(e) $1Q$ -C ($K = 0.06, h = 0.7$)、(f) $2Q$ -CS ($K = 0.06, h = 0.2$)。図2と同様の表記で、灰色の楕円はスピンの波のらせん面を表す。

5. まとめと展望

遍歴電子系の自由度を取り入れた有効スピン模型を用いることで、長周期磁気構造が発現する系に対して高効率な数値シミュレーションを行った。先行研究[11]では磁気ヘッジホッグ格子が現れる一つのパラメタセットに絞って磁場中の振る舞いを調べたが、本研究では潤沢な計算資源を使って広範なパラメタ領域における磁場依存性の計算が可能となった。それによって、トポロジカルな $4Q$ -HL 相を含む多彩な磁気秩序の磁氣的性質と、それらの間の移り変わりを系統的に調べ上げることができた[12]。

空間反転対称性を有する SrFeO_3 の磁気相図[5]と本研究で得られた結果を比較すると、低温で観測されている $2Q$ - $1Q$ 転移が図3の $K \sim 0.1$ における振る舞いとよく一致している。さらに、4スピン相互作用である K の大きさが温度に比例して大きくなり得ることから、中間温度相の $4Q$ - $1Q$ 転移も図3の $K \sim 0.16$ における磁場依存性で定性的にうまく再現できているといえる。ただし、本研究ではあくまで有効模型の基底状態を取り扱っているため、有限温度効果による熱ゆらぎまで考慮した厳密な計算には最近開発された文献[13]の手法を適用するのがよい。また、本研究で得られた結果では磁場中においても創発磁場が全体で打ち消し合ってしまうため、実験[6]で観測されているようなトポロジカルホール効果が現れない。この点を解決するためには、先行研究[13]のように磁気異方性を導入した有効模型を解析する必要があると考えられる。

本研究を含む一連の成果は、計算コストの面からこれまであまり研究がなされてこなかった3次元的なトポロジカル磁気構造の物性現象の解明に大きな進展をもたらすものである。我々は特に、磁気スキルミオン格子や磁気ヘッジホッグ格子が多重 Q 磁気構造というスピンの波の重ね合わせであることに着目し、波の数や形状、振幅、双対角、位相などの多彩な自由度を変化させることでトポロジカルな性質を制御する「スピンモアレエンジニアリング」の研究を推進している[14]。今後の展望としては、磁気ヘッジホッグ格子の特徴的なスピン波励起がもたらす磁化ダイナミクスの実時間シミュレーションや、遍歴電子による金属的な性質をあらわに考慮した電子状態や電気伝導度の計算を行いたい。

参 考 文 献

- [1] N. Nagaosa and Y. Tokura, *Nat. Nano.* **8**, 899 (2013).
- [2] N. Kanazawa *et al.*, *Phys. Rev. B* **86**, 134425 (2012).
- [3] N. Kanazawa *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 156603 (2011).
- [4] Y. Fujishiro *et al.*, *Nat. Commun.* **10**, 1059 (2019).
- [5] S. Ishiwata, *et al.*, *Phys. Rev. B* **101**, 134406 (2020).
- [6] S. Ishiwata, *et al.*, *Phys. Rev. B* **84**, 054427 (2011).
- [7] B. Binz and A. Vishwanath, *Phys. Rev. B* **74**, 214408 (2006).
- [8] J.-H. Park and J. H. Han, *Phys. Rev. B* **83**, 184406 (2011).
- [9] S.-G. Yang, Y.-H. Liu, and J. H. Han, *Phys. Rev. B* **94**, 054420 (2016).
- [10] X.-X. Zhang, A. S. Mishchenko, G. De Filippis, and N. Nagaosa, *Phys. Rev. B* **94**, 174428 (2016).
- [11] S. Okumura, S. Hayami, Y. Kato, and Y. Motome, *Phys. Rev. B* **101**, 144416 (2020).
- [12] S. Okumura, S. Hayami, Y. Kato, and Y. Motome, *J. Phys. Soc. Jpn.* **91**, 093702 (2022).
- [13] Y. Kato and Y. Motome, *Phys. Rev. B* **105**, 174413 (2022).
- [14] 清水宏太郎, 奥村駿, 加藤康之, 求幸年, 日本物理学会誌 第78巻, 第6号(2023).