

繰り込み群による冷却極性分子系での

量子スピン液体実現可能性の探索

福井 毅 勇

東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻

1. はじめに

本研究では、磁性体における量子スピン液体状態の実現可能性の検証を行う。磁性体では、熱力学第3法則に従い絶対零度でエントロピーをゼロにするために、通常は低温で磁気秩序状態への相転移が起こる。ところが、フラストレーションの大きな量子スピン系では、量子スピン液体と呼ばれる非自明な非磁性状態をとることでエントロピーの解放を実現する場合がある。量子スピン液体とは、強いフラストレーションと量子力学的な揺らぎによって磁気秩序相への相転移が妨げられた、あらゆる対称性の自発的破れが存在しない特殊な基底状態である。一部の量子スピン液体では、トポロジカル秩序と呼ばれる非従来型の秩序が存在し、それに付随する分数励起を用いることにより外乱に対して強固なトポロジカル量子計算を実現できるため、純粋科学だけでなく応用面からも注目を集めている。

2006年に提案された Kitaev 模型 [1]は、2次元ハニカム格子上で定義された量子スピン模型であり、ボンドに依存する異方的な相互作用 (Kitaev 型相互作用) による強いフラストレーションを持つにもかかわらず、基底状態が厳密に求まり、さらに、その基底状態が量子スピン液体状態となる。2次元以上の模型で、基底状態が量子スピン液体状態であることが厳密に示される模型は非常に稀である。2009年に、この模型に現れる特徴的なスピン間相互作用が一部のスピン軌道 Mott 絶縁体と呼ばれる物質群において実現することが指摘されてから [2]、理論と実験の双方から精力的な候補物質の探索が行われてきた。しかしながら、多くの候補物質においては、Kitaev 型相互作用に加え、Heisenberg 型相互作用等の相互作用が不可避免的に存在し、それらにより基底状態は量子スピン液体状態にならず磁気秩序状態となってしまう。

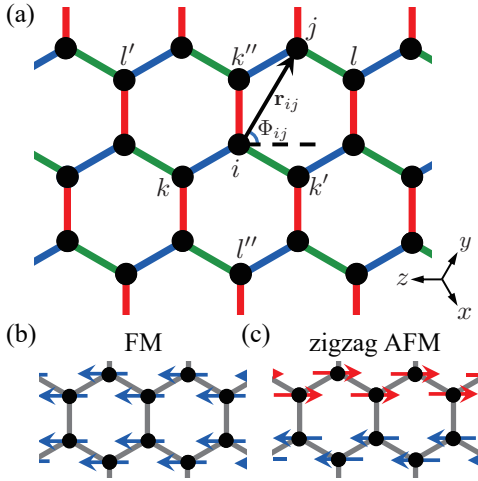
そこで、本研究では冷却極性分子系における Kitaev 量子スピン液体の実現を議論する。光格子中に閉じ込めた LiCs や KRb のような2原子極性分子の、量子スピン模型のシミュレーターとしての可能性は以前から注目されてきていた。2013年には、マイクロ波の照射により、実験的な実装が容易な Kitaev 量子スピン液体の実現可能性が提案された [3,4]。その提案の中では、ボンドに依存する異方的な Kitaev 型相互作用は、分子間の角度に依存した長距離相互作用により実装される。この長距離相互作用により、本当に Kitaev 量子スピン液体状態が実現するのかは、原論文では“open question”とされていたが、今日まで検証されてこなかった。本研究では、この提案をもとに、汎関数繰り込み群法を用いて、Kitaev 量子スピン液体の実現を検証するものである [5]。

2. 模型と手法

上述の提案を元に、本研究では以下のハミルトニアン

$$H = \sum_{i < j} \frac{-1}{r_{ij}^3} \left\{ J_x \left[1 - 2 \cos \left(2\Phi_{ij} - \frac{4\pi}{3} \right) \right] S_i^x S_j^x + J_y \left[1 - 2 \cos \left(2\Phi_{ij} - \frac{2\pi}{3} \right) \right] S_i^y S_j^y \right. \\ \left. + J_z [1 - 2 \cos(2\Phi_{ij})] S_i^z S_j^z \right\}$$

の基底状態を考える。 S_j^μ ($\mu = x, y, z$)は、 $S = 1/2$ の量子スピンの μ 成分、 J_μ は各スピン成分の相互作用的強さを決めるパラメータであり、 r_{ij} はサイト i と j の間のEuclid距離を表す。角度 Φ_{ij} はサイト i と j の相対位置により決まり、その定義は第1図(a)に示されている。



第1図: (a) 模型の模式図と(b) 強磁性秩序と(c) zigzag 反強磁性秩序のスピンの模式図。

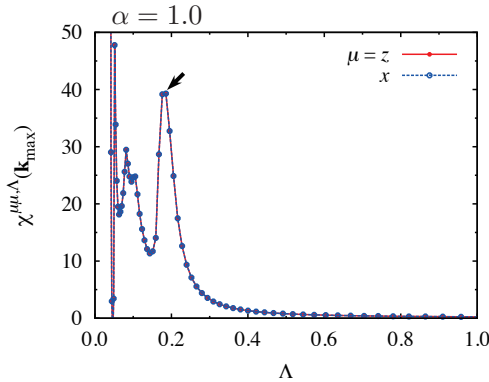
この模型は、最近接サイトのスピン間の相互作用はKitaev模型と同様となっている。しかしながら、次近接スピン間の相互作用は、 XXZ 型のような相互作用となる。このように、この模型はサイト間の相対角度 Φ_{ij} に依存して、各項が混ざり合う複雑な相互作用が働く模型となっている。また、スピン間相互作用はサイト間の距離の3乗分の1で強度が小さくなっていく長距離相互作用であり、このような相互作用のもとでもKitaev量子スピン液体が実現するかは一般には非自明な問題である。

上述のような長距離相互作用を持つ量子スピン模型を取り扱うことができる手法は限られており、これが検証を難しくしている要因でもあると考えられる。本研究では、擬Fermi粒子汎関数繰り込み群 (pseudofermion functional renormalization group、以下、PFFRG) 法と呼ばれる手法を用いる [6]。こ

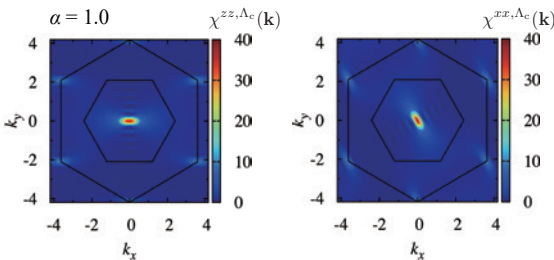
の手法は、2010年に提案された量子スピン模型のための数値計算手法であり、量子スピンをFermi粒子で書き換えることで、相互作用しているFermi粒子系の汎関数繰り込み群法を適用するものである。この手法は、磁場の効果や3体以上の相互作用の効果を取り扱うのが困難であるという制限を持つ一方、系のサイズを大きく取れ、かつ、長距離相互作用の場合も計算コストが最近接相互作用だけの場合と計算コストが変わらないという特長を持つ。これは、本研究の問題の検証に適しており、上述のハミルトニアンで記述される系のスピン感受率をPFFRG法により数値的に計算し、基底状態を明らかにした。計算は、自作のPFFRG法のプログラムを利用し、MPIとopenMPによりハイブリッド並列にて実行した。

3. 研究結果

まずは、強磁性的な模型の場合の結果を述べる。この場合は、ハミルトニアンの J_μ を $J_x = J_y = \alpha$ 、 $J_z = 3 - \alpha$ と取ることで、異方性パラメータ α ($0 \leq \alpha \leq 1.5$)を変えながら感受率の計算を行い、基底状態を調べた。結果としては、全ての α の場合で基底状態は強磁性秩序(第1図(b))になることが分かった。等方的($\alpha = 1$)な場合のスピン感受率の Λ 依存性を第2図に示す。 Λ は繰り込み群計算におけるエネルギーカットオフスケールである。多くのPFFRG法の先行研究に倣い、本研究でも絶対零度極限を取って計算しているため、この Λ が温度のような役割を持つ。実際に、 Λ が系のエネルギースケールより十分大きい領域では、 Λ と温度は比例することを示すこ

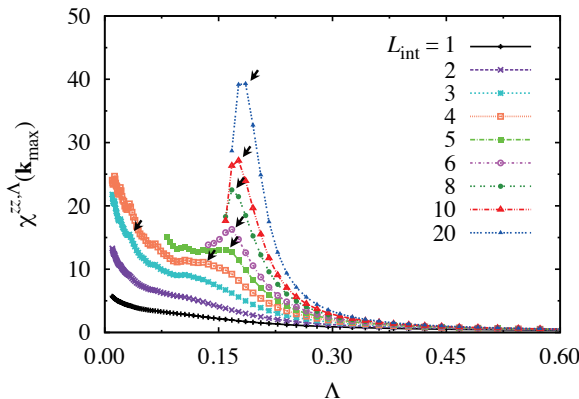


第2図：模型が等方的かつ強磁性的な場合のスピンの感受率の Λ 依存性。



第3図：模型が等方的かつ強磁性的な場合のスピンの感受率の波数依存性。

Kitaev 模型では基底状態はスピン液体であった。今の模型では、最も大きい寄与を持つ最近接スピン間の相互作用は Kitaev 模型と同様であるにもかかわらず、基底状態は秩序状態であった。従って、スピン液体状態への長距離相互作用の効果を明らかにするために、等方的かつ強磁性的な模型の場合に相互作用の到達範囲 L_{int} を導入し、それを、最近接まで ($L_{\text{int}} = 1$)、次近接まで ($L_{\text{int}} = 2$)、第3近接まで ($L_{\text{int}} = 3$)、 \dots と変化させながら感受率を計算して基底状態を明らかにした。



第4図：さまざまな L_{int} の場合のスピンの感受率の Λ 依存性。

とができる。ここで、 \mathbf{k}_{max} は感受率が最大となる波数を表している。第2図では黒矢印で示した $\Lambda = \Lambda_c$ で感受率が発散しており、そのときの \mathbf{k}_{max} の位置は強磁性秩序を示している。 Λ_c での感受率の波数空間におけるプロットを第3図に示す。強磁性状態への揺らぎを示す $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ の強いピークが発達している事が分かる。次に、反強磁性的な模型の場合を考える。この場合は、ハミルトニアン J_μ を $J_x = J_y = -\alpha$ 、 $J_z = -(3-\alpha)$ と取る。この場合も、強磁性的な場合と同様に全ての α において感受率は有限の $\Lambda = \Lambda_c$ で発散し、磁気秩序状態への不安定化を示す。反強磁性的な場合では、感受率の波数空間でのピーク

構造は zigzag 反強磁性に対応しており、 α の値によらず基底状態が zigzag 反強磁性状態であることが明らかとなった。さらに、 Λ_c の α 依存性や、その Curie-Weiss 温度の α 依存性との比較から、強磁性的な場合と反強磁性的な場合の双方で、平均場理論で記述される従来型の秩序であること、また、等方的な場合にフラストレーションが最も強く、量子スピン液体の実現に近いことが分かった。

$L_{\text{int}} = 1$ の時は模型は Kitaev 模型と一致し、 $L_{\text{int}} = \infty$ の場合が元の模型に対応する。 L_{int} を変化させながら計算した感受率の Λ 依存性を第4図に示す。 $L_{\text{int}} = 1, 2$ の場合では感受率は異常を示さないが、 $L_{\text{int}} = 3$ 以上では第4図に示した黒矢印の Λ_c において感受率が発散し、磁気秩序状態への不安定化を示している。よって、 $L_{\text{int}} = 3$ 以上では基底状態は磁気秩序状態となることが明らかとなった。よって、Kitaev 量子スピン液体は模型の長距離相互作用に対して脆く、第3近接までスピ

ン間の相互作用を取り込むとすぐに不安定化してしまうことが結論づけられる。

4. まとめ

本研究では、PFFRG法の計算をスーパーコンピュータを用いて並列実行することで、2013年に提案された冷却極性分子系におけるKitaev量子スピン液体の実現法の提案の数値的検証を行った。結果としては、模型が強磁性的な場合と反強磁性的な場合の双方で、異方性パラメータによらず基底状態が磁気秩序状態であることが分かった。また、相互作用の到達範囲を導入し、それらを変化させながら感受率を計算することによって、相互作用が最近接のみの場合、次近接までの場合では基底状態は量子スピン液体状態であるが、第3近接スピン間までの相互作用を取り入れると量子スピン液体状態は不安定となり、基底状態が磁気秩序状態となった。これより、Kitaev量子スピン液体は模型の長距離相互作用に対して脆弱であることが明らかになった。

本研究の結果により、先行研究で提案されたKitaev量子スピン液体の実現法は不十分であり、もう一工夫が必要であることが明らかになった。より実現に近づくための改善策として、すぐに思いつくのは相互作用のより短距離的な設計だろう。サイト間の距離の3乗分の1で減衰する性質は、もともとの極性分子間の相互作用が双極子相互作用であることに由来する。例えば、2次摂動等により距離の6乗分の1で減衰するように設計できればよりKitaev量子スピン液体の実現に近づくと考えられる。また、Kitaev量子スピン液体は、長距離のKitaev型相互作用よりも長距離のHeisenberg型相互作用に対しての方が安定であるようなので、相互作用の長距離部分をよりHeisenberg型相互作用に近くなるような実装も有効かもしれない。

参 考 文 献

- [1] A. Kitaev, *Ann. Phys.* **321**, 2 (2006).
- [2] G. Jackeli and G. Khaliullin, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 017205 (2009).
- [3] S. R. Manmana, E. M. Stoudenmire, K. R. A. Hazzard, A. M. Rey, and A. V. Gorshkov, *Phys. Rev. B* **87**, 081106(R) (2013).
- [4] A. V. Gorshkov, K. R. Hazzard, and A. M. Rey, *Mol. Phys.* **111**, 1908 (2013).
- [5] K. Fukui, Y. Kato, J. Nasu, and Y. Motome, *Phys. Rev. B* **106**, 014419 (2022).
- [6] J. Reuther and P. Wölfle, *Phys. Rev. B* **81**, 144410 (2010).