

汎関数繰り込み群による量子スピン液体候補物質の物性解明

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の精力的な研究により候補物質が多く発見され、その物性が解明されてきた。それに加え、元々の Kitaev 模型は $S=1/2$ の量子スピン模型であったが、近年になって $S=1$ や $S=3/2$ といった、 $S>1/2$ の Kitaev 模型の候補物質の提案が理論と実験の双方からなされ始めた [3]。しかしながら、一般の S について厳密解は未だ見つかっておらず、数値計算についても、一般に S の増大と共に系の Hilbert 空間の次元も増大することが系統的に S を変化させた研究を困難にしている。さらに、多くの候補物質においては、Kitaev 型相互作用に加え、Heisenberg 型相互作用等の非 Kitaev 型相互作用が不可避免的に存在し、Kitaev 量子スピン液体状態の実現可能性やその安定性を議論する上では、それらの相互作用をも取り入れたフラストレートした量子スピン系の計算手法が必要となる。

そこで、本研究ではこれらの困難を克服し、かつ、大きなシステムサイズでの基底状態の計算が可能である計算手法として PFFRG 法 [4]に着目し、 $S>1/2$ の高スピン候補物質のミニマルな模型の 1 つであるスピン S の Kitaev-Heisenberg 模型の基底状態相図を解明する [5]。

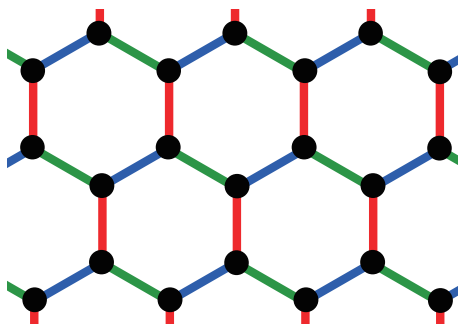
2. 模型と手法

上述の通り、本研究ではスピン S の Kitaev-Heisenberg 模型、

$$\mathcal{H} = \frac{1}{(2S)^2} \sum_{\mu=x,y,z} \sum_{\langle i,j \rangle_{\mu}} [2 \sin(2\pi\xi) S_i^{\mu} S_j^{\mu} + \cos(2\pi\xi) \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j]$$

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、 ξ は Heisenberg 相互作用

用と Kitaev 相互作用の強さの比を決めるパラメータであり、和 $\sum_{\langle i,j \rangle_{\mu}}$ は、 $\mu = x, y, z$ ボンド上の最隣接スピン間の和を表している。この模型が定義されているハニカム格子を図 1 に示す。



第 1 図: ハニカム格子上に定義された模型の模式図。青色、緑色、赤色のボンドはそれぞれ、 x, y, z ボンドを表す。

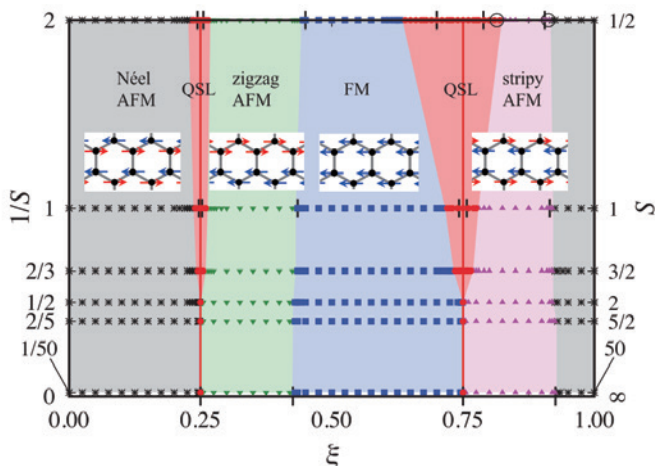
また、ここでは異なる S をもつ模型間でエネルギースケールを揃えるために全体を $(2S)^2$ で割っている。本研究では、この S を系統的に変化させながら模型の基底状態を解明する。

上述の通り、Kitaev 型相互作用と非 Kitaev 型相互作用の双方を取り扱え、かつ、 S を系統的に変化させるような計算が大きなシステムサイズで実行できる手法は非常に限られている。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 [4] を用いてこれを可能にする。

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、フラストレーションのある場合も含む多彩なスピン間相互作用を持つ模型を取り扱うことができる。さらには、一般のスピン S を持つ系への拡張法も提案されている [6]。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

前節で述べたように、Kitaev 型相互作用と Heisenberg 型相互作用の比と符号を決めるパラメータ ξ とスピンの長さ S を系統的に変化させながら、スピン S の Kitaev-Heisenberg 模型の基底状態



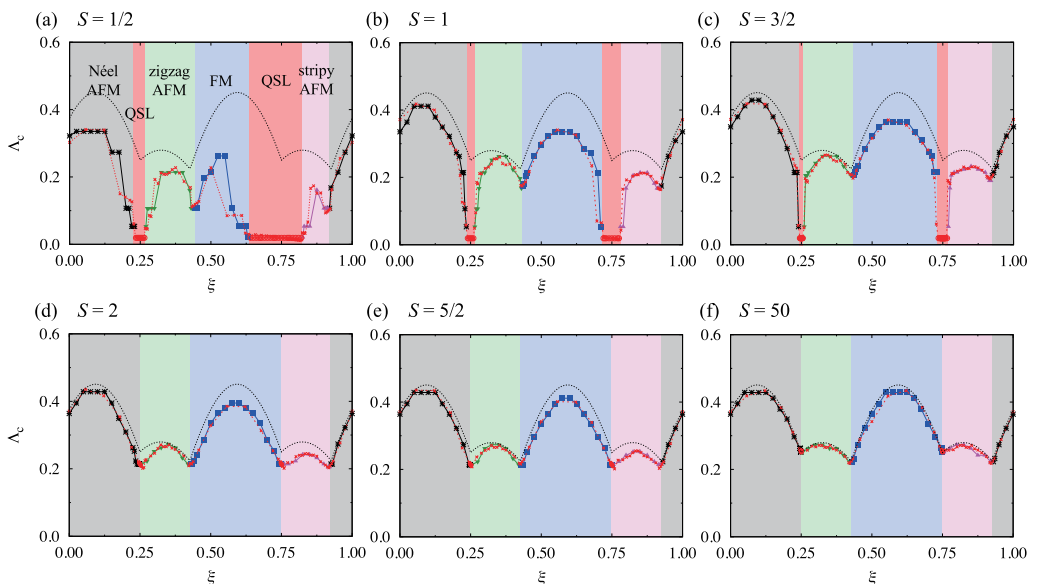
第 2 図: PFFRG 法を用いて得られたスピン S の Kitaev-Heisenberg 模型の基底状態相図。

を PFFRG 法により計算して得られた基底状態相図と各磁気秩序相でのスピン配位の模式図を第 2 図に示す。磁気秩序相への相転移は、常磁性状態で計算したスピン感受率の繰り込み群のカットオフエネルギースケールである Λ 依存性から判断している。 Λ を小さくしながら各 Λ でのスピン感受率を計算し、感受率が最大となる波数 \mathbf{k}_{\max} におけるスピン感受率 (z 成分) $\chi^{zz, \Lambda}(\mathbf{k})$ がある臨界エネルギースケール Λ_c で発散した場合は、その波数 \mathbf{k}_{\max} に対応する秩序ベクトルの

磁気秩序が実現したと判断している。実際の数値計算においては、有限サイズ効果や周波数について離散的なメッシュを用いているために、感受率の発散は感受率が Λ_c 以下の Λ において数値的な不安定化となって現れるため、この不安定化によって秩序化の判定を行なっている。逆に、量子スピン液体状態では $\Lambda=0$ までスピン感受率は発散しないため、計算で用いた Λ の最小値である Λ_{\min} までスピン感受率が不安定な振る舞いを示さない場合は量子スピン液体状態と判定した。ここで、スピン感受率の x 成分と y 成分は模型の 3 回対称性によって z 成分から得られるため、ここでは z 成分のみを考える。

まずは、 $S = 1/2$ 、 1 と $S = \infty$ (古典スピン) の場合に先行研究 [7-9] で示されているように、Néel 反強磁性 (AFM)、zigzag 反強磁性、強磁性 (FM)、stripy 反強磁性の 4 つの磁気秩序相が見られ、これらの秩序の種類とそれらの間の相境界は S にあまり依らないこと、また、これは先行研究で得られた相境界とほぼ一致することが確かめられた。 $S = 1/2$ 、 1 、 ∞ の場合の先行研究における相境界は相図において短い黒線で示している。これら 4 種類の磁気秩序相に加え、赤色で示した量子スピン液体 (QSL) 相が 2 つの Kitaev 点である $\xi = 0.25$ 、 0.75 の周りに見い出された。先行研究と比較して、本研究の結果では量子スピン液体相が過大評価されているが、これはシステムサイズや計算手法の違いだと考えられる。また、図中で \circ で示された PFRG 法を用いた $S = 1/2$ の場合の先行研究 ($0.75 \leq \xi \leq 2.00$) の相境界と本研究による相境界はよく一致している。 S を大きくしていくと量子スピン液体相が狭くなっていき、本研究の手法・近似の範囲内では S が 2 よりも大きい場合は有限の量子スピン液体相は見られなかった。

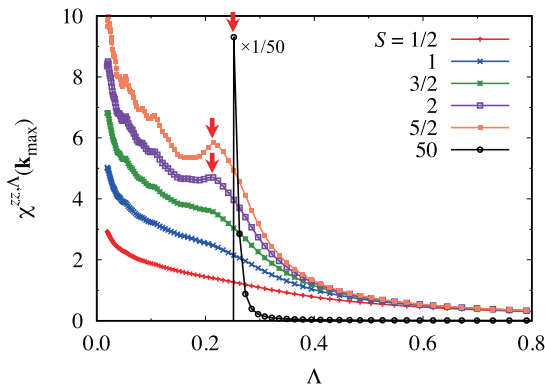
第 3 図に各 S における Λ_c の値を示す。秩序相においては Λ_c の値を、量子スピン液体相においては Λ_{\min} をプロットしている。先行研究では、 S の値によらず Kitaev 点 (本研究では $\xi = 0.25$ 、 0.75) では基底状態はスピン液体であることが解析的に示されている [10]。しかしながら、本研究では、 $S = 1/2$ から $3/2$ までは Kitaev 点では Λ_{\min} までスピン感受率の不安定化が見られないが、 S が 2 以上の場合は、有限の Λ でスピン感受率に不安定化が見られた (これを Λ^* とする)。下で議論する通り、これは計算における近似によるアーティファクトであると考えられる。各秩序



第 3 図: PFRG 法を用いて得られた、各 S での Λ_c の ξ 依存性。

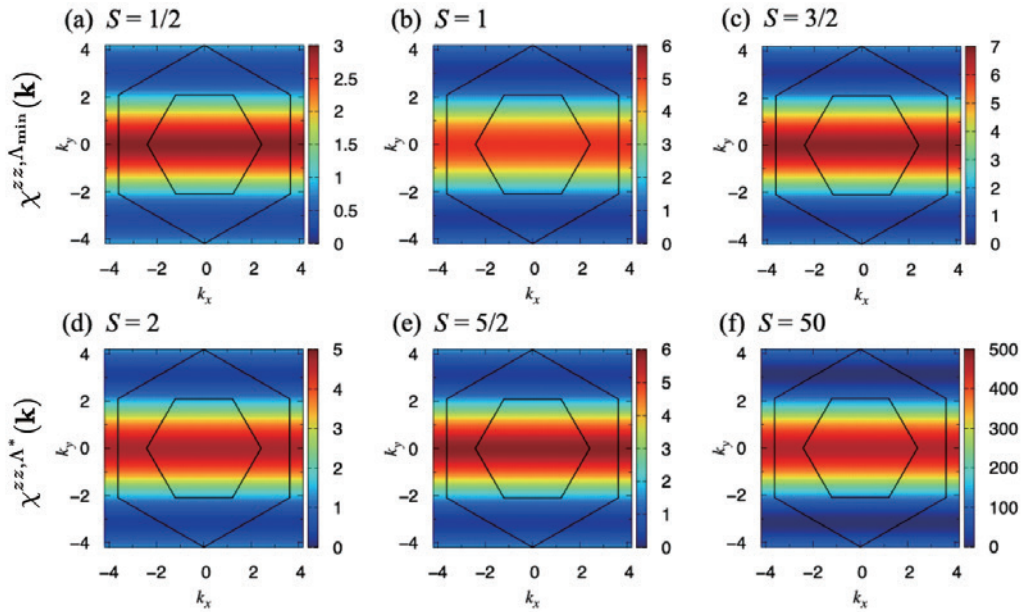
相においては Λ_c はドーム状の構造をとっているが、 $S = 1/2$ では離散的な値をとっているように見え、 S が大きくなるとともに滑らかな Λ 依存性を示している。これは、 S が小さい場合は量子性が強く、周波数依存性が強く効いてくるため、周波数において有限のメッシュを切っていることが原因だと考えられる。実際、 S が小さいときは Λ_c の値が周波数のメッシュ数の影響を受けやすいことが確認されている。また、第 3 図において、古典スピン系のための手法である Luttinger-Tisza 法 [11, 12] によって得られた系の古典エネルギーの絶対値を黒破線で示している。 S が小さい場合は Λ_c は Luttinger-Tisza 法の結果と異なるが、 S を大きくするにつれて Λ_c が Luttinger-Tisza 法に近づくことが見てとれる。本研究で用いたスピン S の場合へ拡張された PFRG 法は $S \rightarrow \infty$ で Luttinger-Tisza 法に一致することが解析的に示されているため [6]、この振る舞いは本研究においてスピン S への PFRG 法の拡張がうまくいっていることを示している。さらに、図において 4 副格子変換を施した Λ_c を赤破線で示している。4 副格子変換においては、 $\xi \rightarrow \xi' = \arctan[-\tan(2\pi\xi) - 1]/2\pi$ と変換され [7]、 ξ における Λ_c は、 $\Lambda_c(\xi) \rightarrow \Lambda_c'(\xi') = \Lambda_c(\xi)/\sqrt{[\sin(2\pi\xi) + \cos(2\pi\xi)]^2 + \cos(2\pi\xi)^2}$ と ξ' における Λ_c' として変換される。分母はエネルギースケールを揃えるための因子である。第 3 図を見ると、 $S = 1/2$ においては Λ_c が離散的であることによる多少のずれはあるものの、全ての S において $\Lambda_c(\xi)$ と $\Lambda_c'(\xi')$ がよく一致している。これは、我々の結果が模型の持っている 4 副格子対称性を反映していることを示しており、結果の妥当性を示すもう 1 つの根拠になっている。

次に、Kitaev 点における結果を詳しく議論する。まず、第 4 図に強磁性 Kitaev 点 ($\xi = 0.75$) におけるスピン感受率 $\chi^{zz}(\mathbf{k})$ の Λ 依存性を示す。 $S = 1/2$ から $3/2$ までは感受率は Λ_{\min} まで不安定化を示さないが、 $S \geq 2$ では赤い矢印で示した Λ^* で感受率が秩序化のような不安定性を示している。この振る舞いが秩序化を意味しているのかどうかを明らかにするために、スピン感受率の波数 \mathbf{k} 依存性を調べる。第 5 図にスピン感受率の波数依存性を示す。 $S = 1/2$ から $3/2$ については Λ_{\min} における感受率、 $S \geq 2$ については Λ^* における感受率をプロットしている。図より、全ての S において、感受率は $\cos(k_y) + \text{const.}$ に比例していることがわかる。これは、スピン感受率が最近接サイト間のみで有限であり、全ての S において、基底状態は



第 4 図: 強磁性 Kitaev 点 ($\xi = 0.75$) でのスピン感受率の Λ 依存性。

スピン相関が最近接のみである Kitaev 型の量子スピン液体であることを示している。これは、先行研究における解析系計算の結果 [10] と一致している。つまり、感受率の Λ 依存性において Λ^* でみられた不安定化のような振る舞いは、系の秩序化に伴う不安定化ではなく、PFRG 法で用いている 1 ループ近似によるアーティファクトであると結論づけられる。近年拡張されたマルチループ近似の PFRG 法 [13, 14] をスピン S に拡張して計算することができれば、このアーティファクトは取り除かれると期待できる。反強磁性 Kitaev 点 ($\xi = 0.25$) においても、基底状態の持つ対称性 (粒子-正孔対称性) より、同様の結果が得られる。



第5図：強磁性 Kitaev 点 ($\xi=0.75$) でのスピン感受率の波数依存性。

4. まとめ

本研究では、スーパーコンピュータを用いた並列計算により、スピン S の場合に拡張された PFRG 法を用いてスピン S の Kitaev-Heisenberg 模型において、スピン S と Kitaev 相互作用と Heisenberg 相互作用の比を決めるパラメータである ξ を系統的に変化させながらスピン感受率を計算することによって基底状態相図を解明した。スピン S を大きくしていくと、量子スピン液体相は S の増加とともに急速に縮小し、 $S \geq 2$ の場合には有限のスピン液体相の領域は見出されなかった。対照的に、 S を増加させても秩序相同士の境界はあまり変化しなかった。また、任意の S について、Kitaev 点ではスピン相関が最近接サイト間のみである量子スピン液体状態となり、これは、先行研究における解析の結果と一致している。

我々の結果は、Kitaev 模型の基底状態で実現する量子スピン液体状態が Heisenberg 相互作用に対して安定であるためには量子揺らぎが重要であること、そして、 $S \geq 2$ の場合に量子スピン液体の実現のためには Kitaev 点に著しく近い相互作用となるように精密に相互作用がチューニングされていなければならない、このような候補物質の発見・設計は困難であることを示している。また、 $S = 3/2$ の Kitaev 量子スピン液体候補物質である CrI_3 について角度依存強磁性共鳴実験の結果から ξ の値として約 0.762 と見積もられており、このパラメータは本研究の結果では量子スピン液体相に含まれる。しかしながら、実験結果は強磁性 (FM) 秩序を示しており、これは、Kitaev-Heisenberg 模型に含まれていない Γ 項などのスピン非対角相互作用の重要性を間接的に示していると言える。

系のサイズを変えずにスピンの長さ S を系統的に変化させる計算は他の手法においては難しく、本研究の結果はスピン S の場合へ拡張された PFRG 法によって初めて得られたものである。この結果は、 $S > 1/2$ の高スピン Kitaev 量子スピン液体候補物質の探索において重要な示唆を与える。本研究は、アメリカ物理学会の発行する国際誌である *Physical Review B* に掲載された [5]。

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] J. Reuther and P. Wölfle, *Phys. Rev. B* **81**, 144410 (2010).
- [5] K. Fukui, Y. Kato, J. Nasu, and Y. Motome, *Phys. Rev. B* **106**, 174416 (2022).
- [6] M. L. Baez and J. Reuther, *Phys. Rev. B* **96**, 045144 (2017).
- [7] J. Chaloupka, G. Jackeli, and G. Khaliullin, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 097204 (2013).
- [8] X.-Y. Dong and D. N. Sheng, *Phys. Rev. B* **102**, 121102(R) (2020).
- [9] C. Price and N. B. Perkins, *Phys. Rev. B* **88**, 024410 (2013).
- [10] G. Baskaran, D. Sen, and R. Shanker, *Phys. Rev. B* **78**, 115116 (2008).
- [11] J. M. Luttinger and L. Tisza, *Phys. Rev.* **70**, 954 (1946).
- [12] J. M. Luttinger, *Phys. Rev.* **81**, 1015 (1915).
- [13] J. Thoenniss, M. K. Ritter, F. B. Kugler, J. von Delft, and M. Punk, *arXiv:2011.01268* (2020).
- [14] D. Kiese, T. Müller, Y. Iqbal, R. Thomale, and S. Trebst, *Phys. Rev. Res.* **4**, 023185 (2022).