

3次元 Kitaev 磁性体の汎関数繰り込み群による研究

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、従来型の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を厳密に示すことができ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 **Kitaev 型相互作用**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。

Kitaev 模型は、元々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るが、任意の **tricoordinate** 格子 (配位数が 3 である格子) に拡張可能である。実際、3次元**ハイパーハニカム格子**への拡張が考えられ [3]、その候補物質として $\beta\text{-Li}_2\text{IrO}_3$ [4]などが調べられてきた。最近になって、 $\beta\text{-ZnIrO}_3$ という新たな候補物質が見出され [5, 6]、2K程度の低温まで磁気秩序が現れないことから新たな興味を集めている。これらの候補物質における **Kitaev 量子スピン液体**の実現可能性の議論や、さらなる候補物質の探索や物質設計において、候補物質の模型について広いパラメータ領域について相図を理論的に明らかにし、現実の物質に不可避免的に存在する **Kitaev 型**以外の相互作用の効果を解明することは重要である。しかしながら、3次元格子上のフラストレーションの強い量子スピン系の数値計算には困難が多く、多くの場合には平均場近似や古典スピン模型による計算にとどまっている。候補物質のミニマルな模型の一つであるハイパーハニカム格子上の **Kitaev-Heisenberg 模型**については、テンソルネットワークに基づいた **gPEPS** (graph-based projected entangled-pair state) 法による研究結果が報告されているが [7]、相図における2つの **Kitaev 点**が量子スピン液体相と磁気秩序相の境界に位置していること (2次元ハニカム格子上の模型の厳密対角化による先行研究では **Kitaev 点**は量子スピン液体相の中心付近に位置している [8])、相図が模型の持つ4副格子対称性と呼ばれる対称性を満たしていないこと、といった問題点が見られる。これは、先行研究においては十分な精度で相図が得られていないことを意味している。

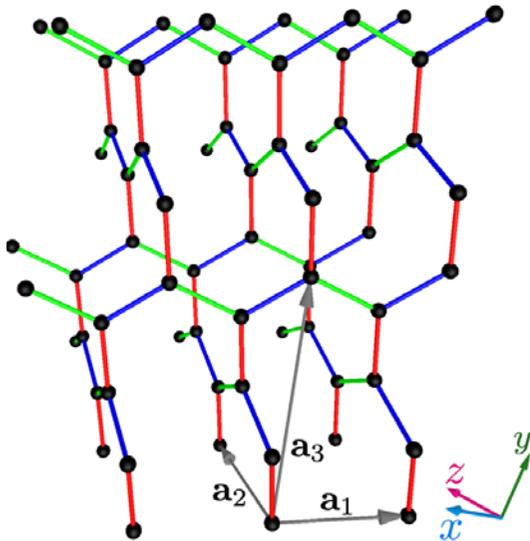
そこで我々は、汎関数繰り込み群の量子スピン系への応用である擬フェルミ粒子汎関数繰り込み群 (pseudofermion functional renormalization group、以下、PFFRG) 法 [9]を用いて、3次元ハイパーハニカム格子上の Kitaev-Heisenberg 模型の基底状態相図を調べる [10]。

2. 模型と手法

本研究ではハイパーハニカム格子上の Kitaev-Heisenberg 模型、

$$\mathcal{H} = \sum_{\mu=x,y,z} \sum_{\langle i,j \rangle_{\mu}} J_{\mu} [2 \sin \varphi S_i^{\mu} S_j^{\mu} + \cos \varphi \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j]$$

の基底状態を考える。 $S_i^{\mu} (\mu = x, y, z)$ は、 $S = 1/2$ の量子スピンの μ 成分、 φ は Heisenberg 相互作用と 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



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。

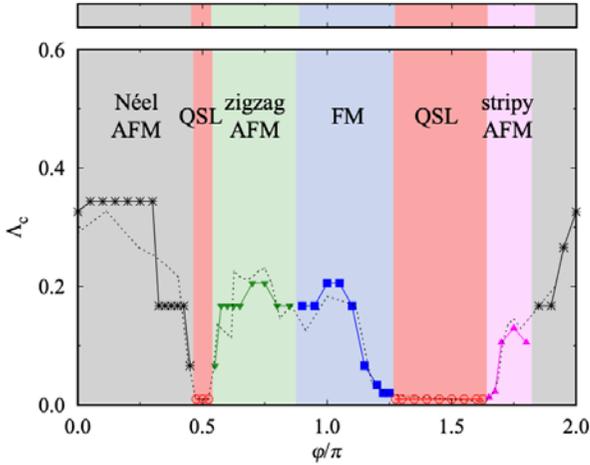
隣接スピン間の和を表している。この模型が定義されているハイパーハニカム格子を図 1 に示す。また、ここで $J_{\mu} (\mu = x, y, z)$ は、相互作用の異方性を表すパラメータである。

上述の通り、強いフラストレーションを有する 3 次元量子スピン系の計算を十分大きなシステムサイズで実行できる手法は限られており、本研究では、PFFRG 法と呼ばれる手法 [9]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。3次元量子スピン系の計算への応用例も多い。これは、本研究の問題に適しており、ここでは、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、相互作用が等方的な場合 ($J_x = J_y = J_z = 1$) について、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 φ を変化させながら PFFRG 法によりスピン感受率を計算することで Kitaev-Heisenberg 模型の基底状態相図を明らかにした。得られた基底状態相図を図 2 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



第2図: PFFRG法を用いて得られた基底状態相図と Λ_c の φ 依存性。

示さない場合は量子スピン液体状態と判定した。gPEPS法による先行研究 [7]で示されているように、基底状態相図には Néel 反強磁性 (AFM)、zigzag 反強磁性、強磁性 (FM)、stripy 反強磁性の4つの磁気秩序相に加えて、 $\varphi/\pi = 0.5, 1.5$ の2つのKitaev点の周りに量子スピン液体相が存在する。 $\varphi/\pi = 0.5$ の反強磁性 Kitaev点の周りの量子スピン液体相は、 $\varphi/\pi = 1.5$ の強磁性 Kitaev点周りの量子スピン液体相よりも狭い。また、gPEPS法による先行研究と異なり、2つのKitaev点はそれぞれの周りの量子スピン液体相の中心付近に位置している。

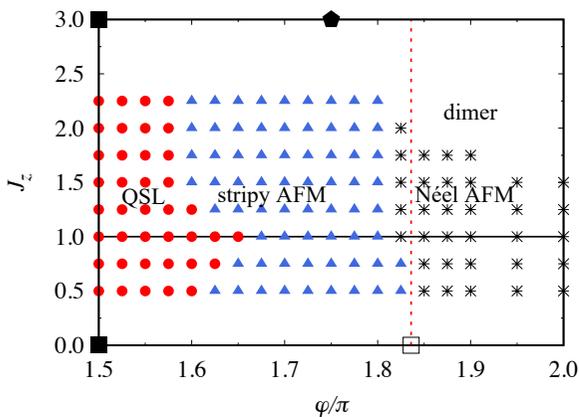
また、図2の基底状態相図の上に2次元ハニカム格子の場合のPFFRGによる基底状態相図 [11]を帯状に示している。これを見ると分かるように、3次元ハイパーハニカム格子上のモデルの基底状態相図と2次元ハニカム格子上のモデルの基底状態相図が非常によく似ている事が分かる。これは、2次元でも3次元でも格子は tricoordinate であるため配位数が3であること、Kitaev量子スピン液体ではスピン相関が短距離であること、特に、Kitaev点ではスピン相関は厳密に最隣接サイト間のみであること、さらには、相図に現れる磁気秩序相が全て commensurate な秩序であること、から理解できる。実際に、古典スピンの場合にLuttinger-Tisza法により計算した2つのモデルの基底状態エネルギーは相図の全てのパラメータ領域で一致する。よって、3次元の場合と2次元の場合とで基底状態相図が類似するのは最もらしいと考えられる。両者の違いが顕著になるのは付加的な相互作用により incommensurate な磁気秩序が現れる場合や、有限温度の場合であると考えられる。

さらに、図2において4副格子変換を施した Λ_c を破線で示している。4副格子変換においては、 $\varphi \rightarrow \varphi' = \arctan[-\tan\varphi - 1]$ と変換され、 φ における Λ_c は、 $\Lambda_c(\varphi) \rightarrow \Lambda_c'(\varphi') = \Lambda_c(\varphi) / \sqrt{[\sin\varphi + \cos\varphi]^2 + \cos^2\varphi}$ と φ' 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。図2を見ると、 $\varphi < 0.5$ 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 φ において $\Lambda_c(\varphi)$ と $\Lambda_c'(\varphi')$ がよく一致している。これは、本研究の結果がモデルの持っている4副格子対称性を反映していることを示しており、gPEPS法による先行研究よりも精度良く基底状態相図が得られていることを示している。

次に、相互作用が異方的な場合を考える。ここでは、2次元ハニカム格子の場合の先行研究

感受率 (の x 成分と z 成分) $\chi^{xx, \Lambda}(\mathbf{k})$, $\chi^{zz, \Lambda}(\mathbf{k})$ 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 Λ_c 以下の Λ における感受率の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

[12] を踏襲して、 φ の範囲として $1.5 \leq \varphi/\pi \leq 2.0$ の範囲を考える。このパラメータ領域では、Kitaev 相互作用が強磁性的で Heisenberg 相互作用が反強磁性的である。異方性を考えるにあたって、相互作用定数を $J_x = J_y = (3 - J_z)/2$ とパラメトライズし、 $J_z \in [0, 3]$ をパラメータとして変化させながら計算を行う。 $J_z = 1$ の時には $J_x = J_y = J_z = 1$ となり上述の等方的な相互作用の場合に帰着する。また、 $J_z \rightarrow 0$ の極限で系は x ボンドと y ボンドからなる独立した 1 次元鎖となり、逆に、 $J_z \rightarrow 3$ の極限で系は z ボンドのみで繋がった独立なダイマーの集合になる。 J_z と φ を変化させながら PFFRG 法によりスピン感受率を計算する事で得られた基底状態相図を図 3 に示す。図においてシンボルが $0.5 \leq J_z \leq 2.25$ の領域のみにしかないので、それ以上に異方的な領域では PFFRG 法が小さい方のエネルギースケール ($J_z \leq 0.5$ の領域では J_x 、 $J_z \geq 2.25$ の領域では $J_x = J_y$) を捉える事ができず、秩序化を示す不安定化を検出する事が困難になるからである。図中の黒い正方形は、それぞれの極限では Kitaev 量子スピン液体が無限小の Heisenberg 相互作用に対して不安定であることを示しており、これは 2 次元ハニカム格子の場合に解析的および数値的に示されている (この 2 つの極限では 3 次元ハイパーハニカム格子も 2 次元ハニカム格子も同様の結果を示すはずである) [12]。また、黒い五角形はダイマー極限の計算から厳密に示す事ができる相境界である。残る白抜き正方形は、2 次元ハニカム格子の場合において厳密対角化法と密度行列繰り込み群 (DMRG) 法を組み合わせ得られた先行研究 [12] の相境界を示している。赤い破線は Luttinger-Tisza 法による古典スピンモデルにおける相境界を示している。結果を見ると、Néel 反強磁性相と stripy 反強磁性相の相境界は異方性に対して緩やかに変化するのみであるのに対して、量子スピン液体相は異方性に対して鋭敏であり、異方性を大きくしていくとその領域が狭くなっていくため、等方的な場合に最も安定となる事が分かる。また、Néel 反強磁性相は J_z を大きくしていくとダイマー相に相転移する事が分かる。本研究の結果は 2 次元ハニカム格子上の模型に対する先行研究 [12] と定性的に類似しており、また、 $J_z \rightarrow 0$ と $J_z \rightarrow 3$ の 2 つの極限において、シンボルで示した相境界とコンシステントであるように見える。



第 3 図: 相互作用に異方性がある場合について PFFRG 法を用いて得られた基底状態相図。 J_z は異方性パラメータ。

それぞれの極限では Kitaev 量子スピン液体が無限小の Heisenberg 相互作用に対して不安定であることを示しており、これは 2 次元ハニカム格子の場合に解析的および数値的に示されている (この 2 つの極限では 3 次元ハイパーハニカム格子も 2 次元ハニカム格子も同様の結果を示すはずである) [12]。また、黒い五角形はダイマー極限の計算から厳密に示す事ができる相境界である。残る白抜き正方形は、2 次元ハニカム格子の場合において厳密対角化法と密度行列繰り込み群 (DMRG) 法を組み合わせ得られた先行研究 [12] の相境界を示している。赤い破線は Luttinger-Tisza 法による古典スピンモデルにおける相境界を示している。結果を見ると、Néel 反強磁性相と stripy 反強磁性相の相境界は異方性に対して緩やかに変化するのみであるのに対して、量子スピン液体相は異方性に対して鋭敏であり、異方性を大きくしていくとその領域が狭くなっていくため、等方的な場合に最も安定となる事が分かる。また、Néel 反強磁性相は J_z を大きくしていくとダイマー相に相転移する事が分かる。本研究の結果は 2 次元ハニカム格子上の模型に対する先行研究 [12] と定性的に類似しており、また、 $J_z \rightarrow 0$ と $J_z \rightarrow 3$ の 2 つの極限において、シンボルで示した相境界とコンシステントであるように見える。

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、3 次元ハイパーハニカム格子に定義された Kitaev-Heisenberg 模型の基底状態相図を、相互作用が等方的な場合と異方性のある場合それぞれに対して PFFRG 法を用いて解明した。結果として、等方的な場合では、2 次元ハニカム格子の場合の PFFRG 法による基底状態相図と非常に類似した結果を得た。これは、格子の配位数が 3 であることや、量子スピン液体が短距離のみの相関を持つこと、そして、秩序相が全て commensurate であることから理解できた。また、ここで得られた相図では 2 つの Kitaev 点は量子スピン液体相の中心付近に位置しており、さらに、模型の持つ 4 副格子対称性を反映

した結果となっているため、gPEPS 法による先行研究よりも精度良く基底状態相図を解明できたと言える。また、相互作用に異方性がある場合は、エネルギースケールの問題からアクセスできるパラメータ領域に制限はあるものの、等方的な場合と同じく基底状態相図が 2 次元ハニカム格子のものと定性的によく似ていることが分かった。量子スピン液体相と秩序相の相境界は異方性に対して鋭敏に変化し、相互作用が等方的な場合に量子スピン液体相が最も安定であることが示された。3次元格子上のフラストレーションの大きな量子スピン模型に対する計算を大きなシステムサイズについて実行できる数値的手法は非常に限られており、本研究の結果は他の手法では得難いものであり、また、3次元 Kitaev 模型候補物質の物質設計や探索において重要な示唆を与え得る。展望としては対称なスピン非対角相互作用である Γ 相互作用を取り入れた計算が挙げられる。代表的なハイパーハニカム格子をもつ候補物質である β -Li₂IrO₃ に対する実験結果は低温において incommensurate で非共面的な磁気秩序を示しているが、この秩序は図 2 や図 3 には現れていない。 Γ 相互作用を取り入れた古典スピンに対する理論研究においては、スパイラル秩序や多重 Q 秩序などの磁気秩序の実現が議論されており、 Γ 相互作用により実験で得られた磁気秩序を再現する事が期待される。実際に、近年の実験結果は Γ 相互作用が大きく、無視できないことを示しており、 Γ 相互作用を取り入れた量子スピン系における計算が必要である。本研究は、日本物理学会の発行する国際誌である Journal of Physical Society of Japan に掲載された [10]。手法についてのより専門的な説明や詳細な計算結果はそちらをご参照いただきたい。

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. Mandal and N. Surendran, Phys. Rev. B **79**, 024426 (2009).
- [4] T. Takayama *et al.*, Phys. Rev. Lett. **114**, 077202 (2015).
- [5] Y. Haraguchi *et al.*, Phys. Rev. Mater. **6**, L021401 (2022).
- [6] Y. Haraguchi and H. A. Katori, Chem. Lett. **52**, 404 (2023).
- [7] S. S. Jahromi and R. Orús, Phys. Rev. B **99**, 195105 (2019).
- [8] J. Chaloupka, G. Jackeli, and G. Khaliullin, Phys. Rev. Lett. **110**, 097204 (2013).
- [9] J. Reuther and P. Wölfle, Phys. Rev. B **81**, 144410 (2010).
- [10] K. Fukui, Y. Kato, and Y. Motome, J. Phys. Soc. Jpn. **92**, 064708 (2023).
- [11] K. Fukui, Y. Kato, J. Nasu, and Y. Motome, Phys. Rev. B **106**, 174416 (2022).
- [12] E. Sela *et al.*, Phys. Rev. B **90**, 035113 (2014).