

プロジェクト名(タイトル):

Numerical study of high-temperature quantum spin ice

利用者氏名:

○小野田 繁樹

理研における所属研究室名:

古崎物性理論研究室

1. 本プロジェクトの研究の背景、目的、関係するプロジェクトとの関係

量子スピン液体は、非自明なトポロジーとゲージ構造、さらに、長距離量子エンタングルメントが自発的に発現する磁性体である。通常の強磁性体や反強磁性体のように、長距離磁気秩序を示さず、スピンから分化した量子数を運ぶ励起子スピノンをもつ。特に、量子スピンアイス系と呼ばれるパイロクロア磁性体群では、 $U(1)$ ゲージ構造を有し、磁化のモノポールを運ぶスピノン励起をもつ $U(1)$ 量子スピン液体が基底状態で実現しうることが、これまでの理論的研究から明らかになっている。パイロクロア型量子スピンアイス系のエネルギースケールは極めて低いが、スピネル系 Ir_2O_4 において室温のエネルギースケールを持った量子スピンアイス系が実現しうることが我々の理論的研究から明らかになった(S. Onoda, F. Ishii, First-principles design of the iridate spinel Ir_2O_4 for high-temperature quantum spin ice. Phys. Rev. Lett. **122**, 067201 (2019))。

本研究では、Q20485 に引き続き、上述のシナリオを物質科学の観点から実現するための大規模第一原理計算を行うことを目的とした。特に、量子スピン液体と磁性絶縁体・バンド絶縁体との界面は、モノポール超流動流などの新しい現象を担う舞台となることが期待されている(S. Nakosai, S. Onoda, Magnetic monopole supercurrent through a quantum spin ice tunnel junction. J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 053701 (2019))。そこで、 Ir_2O_4 とその関連物質との界面の安定性・実現性を理論的に考案し、その磁気的性質を含む電子物性をLDA+U法に基づいた第一原理計算によって解明する。

2. 具体的な利用内容、計算方法

OPENMX package に基づいた第一原理計算コードを用いて、基板によって面内格子定数が固定されたと想定した Ir_2O_4 大規模超格子系の内部構造を最適化するための分

子動力学計算を GWMP6 ノード40コア並列で実施した。前年度に収束性を改善したものの、c軸方向の格子定数一つに対して、72 時間のジョブが3~10個ほど必要となっており、これまでに 11.3 Mh のCPU 時間を消費した。

3. 結果

これまでに c 軸格子定数で27点について収束が得られている。しかし、エネルギーを減少させるように格子定数がまだ変化しており、現時点で未だエネルギー極小には到達できていない。単位格子体積をバルク物質の場合と不変にするような格子定数の組み合わせが実現されることが通常多いため、基板で決定される面内格子定数と、超格子を組む Ir_2O_4 とその関連物質のバルクでの単位格子体積を元に、上記の原理を満たすc軸方向の格子定数の近辺で最安定構造を模索してきたが、界面の存在のためにこの原理からのずれが生じている可能性が高い。

4. まとめ

高温量子スピンアイス系の有力候補として知られている Ir_2O_4 系に対して、物質科学的見地から実現可能性を考慮した超格子系の第一原理計算を行った。結晶構造最適化の完遂までさらに数 G コア時間ほど必要となる可能性がある。また、磁性の精査、および、超格子パラメータを介した磁性のチューニングは、来年度に残された課題である。

5. 今後の計画・展望

本研究計画は来年度に引き継ぎ、前半に構造最適化の完了を目指し、後半に強いクーロン相互作用の効果を取り込んだLDA+U法による計算を推進する計画である。これにより磁気構造・スピン交換相互作用を解明するとともに、量子スピン液体実現に向けた構造のチューニングに向けた理論探索により、固体物理学・物質科学における量子スピン液体の研究にブレークスルーをもたらすことが期待される。