

令和 4 年 6 月 16 日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2021

課題番号：18K03461

研究課題名(和文) 磁場効果を取り込んだ第一原理計算手法の開発とそれを用いた磁気現象の解析

研究課題名(英文) Development of a first-principles calculation method incorporating magnetic-field effects and its application to the analysis of magnetic phenomena

研究代表者

樋口 克彦 (Katsuhiko, Higuchi)

広島大学・先進理工系科学研究科(先)・准教授

研究者番号：20325145

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,500,000円

研究成果の概要(和文)：磁場が印加された固体の電子構造を計算する第一原理的手法として、従来のパイエルス位相を用いた近似を超えた「拡張された磁場を含んだ相対論的強束縛近似法(拡張MFRTB法)」の開発を行った。これにより、グラフェンの大きな軌道反磁性が再現できること、高磁場領域では特徴的な磁化の磁場依存性を示すことを明らかにした。また、基板上グラフェンで観測されている小さなg因子は、非対称表面ポテンシャルによるラシュバ効果が主な原因であることを明らかにした。拡張MFRTB法によって量子ホール効果を再考するために、磁気ブロッホ状態の異常速度の計算をするための定式化を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

固体の磁場に対する応答を第一原理的に記述することは、多くの研究者がその重要性を認識していたものの、ペクトルポテンシャルを含むため計算手法の開発が難しく遅々として進んできませんでした。本研究で開発した計算手法はこの状況を打破するものです。また本研究で行った固体の磁場に対する応答の第一原理的な計算は、世界に先駆けて行ったものです。ゆえに、そこから得られる成果はいずれも、固体の磁場に対する応答の理解に、新たな視点を与えるものになっています。さらに本研究の成果は、固体の磁場に対する応答を利用する例えばスピントロニクス分野の材料設計に対して、新たな端緒となり得ます。

研究成果の概要(英文)：We have developed the "extended magnetic-field containing relativistic tight-binding approximation method" (extended MFRTB method) as a first-principles method for calculating the electronic structure of materials immersed in a magnetic field. This method goes beyond the conventional approximation using the Peierls phase. It is shown that this method can revisit the strong orbital diamagnetism of graphene and that graphene exhibits a characteristic magnetic-field dependence of magnetization in high magnetic fields. It is also found that the small g-factor observed in graphene deposited on substrate is mainly due to the Rashba effect caused by the asymmetric surface potential. In order to revisit the quantum Hall effect by the extended MFRTB method, a formulation is developed to calculate the anomalous velocity of the magnetic Bloch state.

研究分野：物性理論

キーワード：磁気現象 第一原理計算 強束縛近似 磁気的ブロッホ関数 グラフェン g因子 量子ホール効果

1. 研究開始当初の背景

磁場が印加された固体が示す磁性としては、自由電子模型に基づくパウリ常磁性やランダウ反磁性、局在電子模型に基づくキュリー則に従う常磁性、バンブレック常磁性およびランジュバン反磁性などが知られています。また磁場が印加された金属では、ドハース-ファンアルフェン(dHvA)効果として知られる磁化の振動現象や、さらには、二次元系では電気伝導度に量子ホール効果が現れます。このように、磁場下固体では、磁場が印加されていない通常固体とは異なった多様な物性が観測されています。

磁場下固体が示す多様な物性を扱う理論的な手法としては、自由電子系に対するランダウの理論に結晶ポテンシャルの効果を有効質量として繰り込む有効質量近似法[1,2], 半古典近似に基づくリフシツ-コセビッチ(LK)理論[1,2], 磁場効果をパイエルス位相と呼ばれる磁場に依存した位相因子の形で取り込むホフスタッターの方法[3]があります。有効質量近似法は、量子ホール効果の説明に使われるなど成功をおさめているものの、dHvA 効果を記述する際には過度な単純化によって生じる問題が指摘されています[2]。半古典近似に基づく LK 理論は dHvA 効果を扱う標準的な理論となっていますが、量子論的な完全な記述とは言えません[2]。また、ホフスタッターの方法におけるパイエルス位相による磁場効果の取り込みは、予備的な研究から、磁場効果を最低次の摂動論で取り扱うことに相当します[4-10]。そのため磁場効果の取り込みは十分であるとは言えません。磁場が印加されていない通常固体に対しては様々な第一原理計算手法が開発されているのに比べ[11], 上で述べたように、磁場下固体に対しては、第一原理計算手法はほとんどないのが現状でした。

2. 研究の目的

最近われわれのグループでは、磁場効果、結晶ポテンシャルの効果および相対論的效果を考慮に入れた、磁場下固体のための第一原理的計算手法の開発を行ってきました[4-10]。これを「磁場を含んだ相対論的強束縛近似法(以下、MFRTB 法)」と呼んでいます。MFRTB 法では、磁場効果を最低次の摂動論(パイエルス位相による磁場効果)で取り込んでいますが[4-10]、理論自身が摂動論に基礎を置いているために、高磁場では適用できないだけでなく、実験室レベルの低磁場においても高い精度が望めません。例えば、精度が要求されるスピントロニクス材料における g 因子の理論的予測などには、现阶段の MFRTB 法では磁場効果の取り込みは十分であるとは言えません。本研究では、磁場効果を高次まで取り込んだ「拡張 MFRTB 法」を開発し、これをスピントロニクス材料における g 因子の理論予測、磁性の理論予測、量子ホール効果の記述に適用することを目的とします。具体的には下記の4項目を目的としました。

目的1: パイエルス位相を超えた磁場効果を取り込んだ「拡張 MFRTB 法」の開発

目的2: 「拡張 MFRTB 法」による磁性の理論予測

目的3: 「拡張 MFRTB 法」によるスピントロニクス材料の g 因子の理論予測

目的4: 「拡張 MFRTB 法」による量子ホール効果の再考

3. 研究の方法

3.1 パイエルス位相を超えた磁場効果を取り込んだ「拡張 MFRTB 法」の開発

従来の MFRTB 法では、「磁場下相対論的とび移り積分」に含まれる磁場効果を最低次の摂動論で見積もっています[4-10]。その結果、MFRTB 法で扱う「磁場下相対論的とび移り積分」は、相対論的とび移り積分にパイエルス位相と呼ばれる磁場に依存した位相因子をかけた形で近似されています。本研究では、変分法を用いることで、これまで無視されてきた磁場効果の高次摂動項まで取り込んだ形式に MFRTB 法を拡張しました。こうすることで、従来無視されてきた磁場による原子軌道のゆがみの効果を取り込みました。

3.2 「拡張 MFRTB 法」による磁性の理論予測

本研究で開発した「拡張 MFRTB 法」では、完全に自由電子でもなく原子軌道でもない両方の特性を持った磁氣的 Bloch 状態による磁化が計算できます。本研究では、「拡張 MFRTB 法」を一樣磁場が印加されたグラフェンに適用し、グラフェンで観測されている強い軌道反磁性が記述できるかを検討しました。

3.3 「拡張 MFRTB 法」によるスピントロニクス材料の g 因子の理論予測

スピントロニクス材料として注目されているグラフェンの電子の g 因子が自由電子のそれよりも小さくなるのが、電子スピン共鳴の実験グループにより最近報告され、高い注目を集めています[12, 13]。実験で観測される g 因子は、スピン軌道相互作用による有効磁場の影響により、自由電子の g 因子の値から変化することが知られています[14]。本研究で開発した「拡張 MFRTB 法」は磁場下固体中の電子に対する Dirac 方程式を解く手法なので、スピン軌道相互作用は自然な形で含まれています。従って、磁場効果の取り込みの改善と合わせて考えれば、「拡張 MFRTB 法」は g 因子の高精度な理論予測に有効と考えられます。本研究では、グラフェンにおける電子

の g 因子の理論予測を行い、低い g 因子($g=1.94-1.95$)[12, 13]の起源を解明しました。

3.4 「拡張 MFRTB 法」による量子ホール効果の再考

「拡張 MFRTB 法」を用いて、グラフェンで観測されている（半整数）量子ホール効果[15,16]の再考を行います。従来のホフスタッターの方法では縮退していたエネルギー準位が、パイエルス位相を超えて磁場効果を取り込む本方法では、分裂することが期待されます。グラフェンの量子ホール効果の実験で報告されているゼロエネルギーにおけるエネルギー準位の分裂[17]を、本方法がどこまで記述できるのかを明らかにし、従来の解釈[17]がどのように補強・修正されるのかを検討します。

4. 研究成果

4.1 パイエルス位相を超えた磁場効果を取り込んだ「拡張 MFRTB 法」の開発

変分法を用いることで磁場の効果を高次まで取り込んだ「拡張 MFRTB 法」を開発しました[18]。これにより、磁場下固体に対するハミルトニアン行列に、従来の MFRTB 法にも含まれていた異常ゼーマン効果に加えてパッシュェン・バック効果の取り込みができるようになりました。また、磁場による軌道の混成効果を取り込むことができるようになり、その結果、磁場下飛び移り積分の近似形として広く用いられているパイエルス位相因子を用いた近似を超えた近似を得ました[18]。

また、構築した「拡張 MFRTB 法」に基づく電子構造計算のためのプログラム開発も行いました。開発したプログラムによるテスト計算として、磁場下結晶シリコンの電子構造計算を行いました。その結果、「拡張 MFRTB 法」における磁場効果の高次項の取り込みにより、実験室レベルの磁場領域でも電子構造が補正されることを明らかにしました[18]。特に、パイエルス位相因子を用いた近似を超えた近似を用いることで、図 1 に示したようにシリコンの価電子帯の状態が変化する様子を明らかにしました[18]。さらに、高磁場領域では従来の MFRTB 法やホフスタッターの方法で得られる電子構造とは大きく異なる状態になることを明らかにしました[18]。

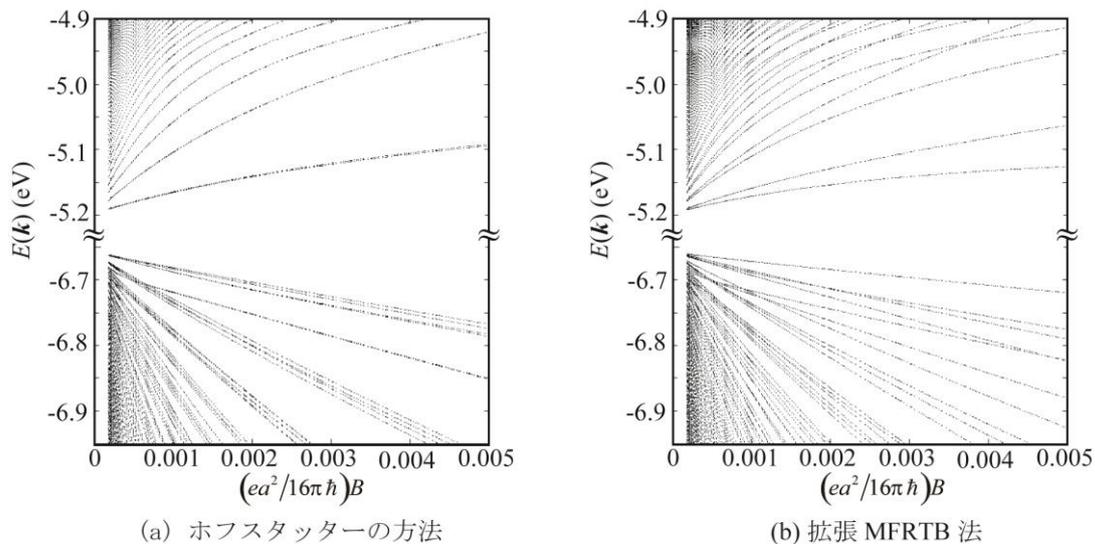


図 1: 磁場下シリコンのエネルギー準位の磁場依存性 [18]

4.2 「拡張 MFRTB 法」による磁性の理論予測

グラフェンは大きな反磁性磁化を示すことが知られています[19,20]。「拡張 MFRTB 法」を磁場下グラフェンに適用し、グラフェンの大きな反磁性磁化が再現されるかを確認しました。その結果、図 2 に示すように低磁場領域 (10(T)以下) で $M \propto -\sqrt{B}$ のような急激な立ち上がりを示すことが示されました[21]。また、磁場が大きくなるにつれて、磁化の大きさは 12(T)付近から減少し、さらに強磁場の 50(T)付近から再び増加する傾向を示した[21]。この特徴的な磁化の磁場依存性は、磁場下グラフェンのバンド構造に起因していることを明らかにしました。

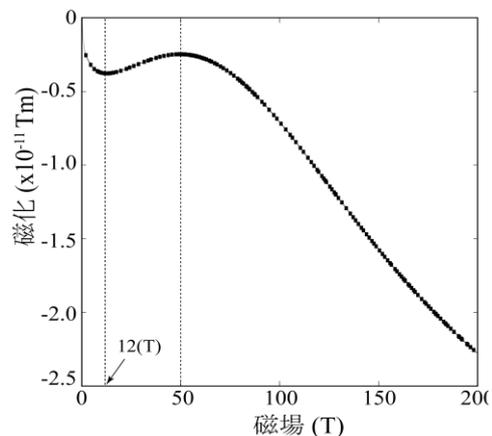


図 2: グラフェンの磁化の磁場依存性

4.3 「拡張 MFRTB 法」によるスピントロニクス材料の g 因子の理論予測

グラフェンにおけるスピン軌道相互作用が g 因子に与える影響を「拡張 MFRTB 法」を用いて解析しました。スピン軌道相互作用による有効磁場は約 0.2(T)であることを明らかにしました[21]。この有効磁場は外部磁場依存性を持たず一定であることから、スピン軌道相互作用は g 因子の低下に影響を与えないことを明らかにしました[21]。

また反磁性磁化からグラフェンに発生する内部磁場を計算し、内部磁場が g 因子に与える影響を計算しました。その結果、実験で得られている g 因子の 3.1%の低下のうち、反磁性磁化による内部磁場の影響は 0.7%程度であることが分かりました[21]。反磁性磁化による内部磁場が g 因子の低下の原因の一つであることはわかりましたが、他に原因があることが示唆される結果でした。

さらに本研究では、基板上グラフェンに形成される非対称表面ポテンシャルによるラッシュバ効果が g 因子に与える影響を理論的に調べました[22]。「拡張 MFRTB 法」にラッシュバ効果を取り込むためには、非対称表面ポテンシャルを見積もる必要があります。本研究ではラングとコーンによる表面ポテンシャルの研究[23]を参考にし、グラフェンに対する表面ポテンシャルを近似的に求めることに成功しました。得られた表面ポテンシャルの有効性を確認するために、磁場下グラフェンを磁場が印加された擬二次元電子として扱い、ラッシュバ効果が g 因子に与える影響を計算しました。その結果、非対称表面ポテンシャルによるラッシュバ効果による有効磁場 B_{Rashba} (図 3) がグラフェン平面と平行に形成されることで、実験で観測される g 因子が低下することを明らかにしました[22]。

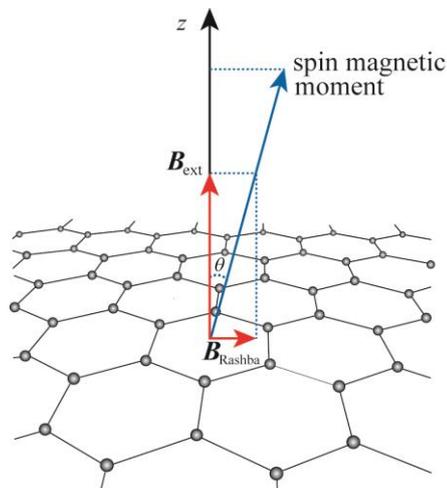


図 3: ラッシュバ効果による有効磁場

4.4 「拡張 MFRTB 法」による量子ホール効果の再考

量子ホール効果は、磁気ブロッホバンドのベリー曲率で表される異常速度によって引き起こされることが知られています[15, 16]。「拡張 MFRTB 法」により得られる磁場下固体の電子構造を基礎に量子ホール効果の再考を行うために、本研究では、磁気ブロッホ関数から構成される波束のダイナミクスを調べました。その結果、磁気的ブロッホ関数に特有な異常速度項の出現が示唆される結果を得ました[24]。また「拡張 MFRTB 法」により得られる磁気的ブロッホ関数から量子ホール効果の原因となっている異常速度を計算するための定式化を行いました。

グラフェンで観測されている半整数量子ホール効果[15,16]の具体的な再考は今後の課題となりました。しかし、4.3 節で述べた「拡張 MFRTB 法」のグラフェンへの適用結果から、フェルミエネルギー近傍のエネルギー準位の分裂が「拡張 MFRTB 法」により記述できることがわかっています。したがって、「拡張 MFRTB 法」により実験結果[17]を再現することができると期待されます。

参考文献

- [1] 例えば, D. Shoenberg, *Magnetic Oscillation in Metals* (Cambridge Univ. Press, Cambridge 1984).
- [2] J. Kübler, *Theory of Itinerant Electron Magnetism* (Oxford Univ. Press, Oxford 2000), Chap. 1.
- [3] D. R. Hofstadter, *Phys. Rev. B* **14**, 2239 (1976).
- [4] K. Higuchi, D. Hamal and M. Higuchi, *Phys. Rev. B* **91**, 075122 (2015).
- [5] D. Hamal, M. Higuchi and K. Higuchi, *Phys. Rev. B* **91**, 245101 (2015).
- [6] M. Higuchi, D. Hamal and K. Higuchi, *Phys. Rev. B* **95**, 195153 (2017).
- [7] K. Higuchi, D. Hamal and M. Higuchi, *Phys. Rev. B* **96**, 235125 (2017).
- [8] [招待講演] K. Higuchi, *EMN Meeting on Computation and Theory 2017* (Dubai, Nov. 2017).
- [9] [招待講演] M. Higuchi and K. Higuchi, *CC3DMR 2016* (Seoul, June 2016).
- [10] 科学研究費 新学術領域「原子層科学」(公募研究, 研究代表) 平成 28 年度~平成 29 年度.
- [11] 例えば, R. M. Martin, *Electronic Structure* (Cambridge Univ. Press, Cambridge 2004).
- [12] R. G. Mani, et al., *Nat. Commun.* **3**, 996 (2012).
- [13] T. J. Lyon, et al., *Phys. Rev. Lett.* **199**, 066802 (2017).
- [14] Y. Yafet, *Sol. St. Phys.* **14**, 1 (1963).
- [15] D. J. Thouless, M. Kohmoto, M. P. Nightingale, and M. denNijs, *Phys. Rev. Lett.* **49**, 405 (1982).
- [16] M. Kohmoto, *Ann. Phys.* **160**, 343 (1985).
- [17] Y. Zhang, et al., *Phys. Rev. Lett.* **96**, 136806 (2006).
- [18] K. Higuchi, D. B. Hamal and M. Higuchi, *Phys. Rev. B* **97**, 195135 (2018).
- [19] J. W. McClure, *Phys. Rev.* **104**, 666 (1956).
- [20] J. W. McClure, *Phys. Rev.* **119**, 606 (1960).

- [21] M. Higuchi, D. B. Hamal, A. Shrestha and K. Higuchi, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 094707 (2019).
- [22] A. Shrestha, K. Higuchi, S. Yoshida, and M. Higuchi, J. Appl. Phys. **130**, 124303 (2021).
- [23] N. D. Lang and W. Kohn, Phys. Rev. B **1**, 4555 (1970).
- [24] K. Higuchi, M. A. Rashid, W. Sakamoto, and M. Higuchi, 論文投稿中.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計9件（うち査読付論文 9件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 A. Shrestha, K. Higuchi, S. Yoshida, and M. Higuchi	4. 巻 130
2. 論文標題 Reduction of G-factor due to Rashba Effect in Graphene	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 J. Appl. Phys.	6. 最初と最後の頁 124303/1-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0057559	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 K. Higuchi, N. Matsumoto, Y. Kamijo and M. Higuchi	4. 巻 33
2. 論文標題 Superconducting gap and attractive interaction between electrons investigated by the current-density functional theory for superconductors	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 J. Phys.: Condens. Matter	6. 最初と最後の頁 435602/1-1
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-648X/ac1967	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 K. Higuchi and M. Higuchi	4. 巻 5
2. 論文標題 Cluster decomposition principle and two-electron wave function of the Cooper pair in the BCS superconducting state	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 J. Phys. Commun.	6. 最初と最後の頁 095003/1-1
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/2399-6528/ac1e40	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 K. Higuchi and M. Higuchi	4. 巻 30
2. 論文標題 A Calculation Scheme for the Pair-Density Functional Theory for the Superconductor	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 JPS Conf.	6. 最初と最後の頁 011066/1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSCP.30.011006	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 K. Higuchi, N. Matsumoto, Y. Kamiyo and M. Higuchi	4. 巻 102
2. 論文標題 Magnetic field and temperature dependence of the superconducting gap through current-density functional theory for superconductors	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 014515/1-10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.014515	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 M. Higuchi, D. B. Hamal, A. Shrestha and K. Higuchi	4. 巻 88
2. 論文標題 Reduced effective g-factor in graphene	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 J. Phys. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 094707/1-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.88.094707	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 K. Higuchi, Y. Fujie, H. Shimizu and M. Higuchi	4. 巻 100
2. 論文標題 Time-Dependent Current-Density Functional Theory Taking into Consideration the Effect of the Energy Dissipation	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Phys. Rev. A	6. 最初と最後の頁 062503/1-14
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.100.062503	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 K. Higuchi, D. B. Hamal, and M. Higuchi	4. 巻 97
2. 論文標題 Nonperturbative description of the butterfly diagram of energy spectra for materials immersed in a magnetic field	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 195135/1-10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.97.195135	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 M. Kodera, M. Miyasita, H. Shimizu, K. Higuchi, and M. Higuchi	4. 巻 87
2. 論文標題 Renormalized Moller-Plesset Correlation Energy Functional Used in the Optimized Effective Potential Method	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 J. Phys. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 014302/1-11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.87.014302	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計4件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 4件)

1. 発表者名 K. Higuchi and M. Higuchi
2. 発表標題 A Calculation Scheme for the Pair-Density Functional Theory for the Superconductor
3. 学会等名 International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 K. Higuchi, A. Shrestha, D. B. Hamal and M. Higuchi
2. 発表標題 Magnetic properties of graphene investigated by the nonperturbative MFRTB method
3. 学会等名 Asia Pacific Society for Material Research(APSMR) 2019 Annual Meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Higuchi and K. Higuchi
2. 発表標題 Density Functional Scheme for Calculating the Fluctuation of the Electron Number in the Superconductor
3. 学会等名 Asia Pacific Society for Material Research(APSMR) 2019 Annual Meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 K. Higuchi, D. B. Hamal and M. Higuchi
2. 発表標題 Nonperturbative description of the energy spectra for materials immersed in a magnetic field
3. 学会等名 The 16th International Conference on Megagauss Magnetic field generation and Related Topics (国際学会)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	樋口 雅彦 (Higuchi Masahiko) (10292202)	信州大学・学術研究院理学系・教授 (13601)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------