

## 科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年5月14日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2012

課題番号：23654133

研究課題名（和文） トポロジカル不規則系の第一原理電子状態計算

研究課題名（英文） First-principles electronic structure calculation of topologically disordered systems

研究代表者

赤井 久純 (AKAI HISAZUMI)

大阪大学・その他部局等・名誉教授

研究者番号：70124873

研究成果の概要（和文）：

アモルファスや液体金属など、原子の空間配置（構造のトポロジー）が不規則性をもつ系の第一原理電子状態計算を可能にする2つの手法を開発した。第一は格子を作る原子が不規則に変位したような「弱いトポロジカル不規則」を扱うもので、第二は液体金属のような「強いトポロジカル不規則」を扱うのに適した方法である。前者では電気伝導における電子フォノン散乱の効果がうまく扱えることを示した。後者においてはグリーン関数にあらわれる特異性の処理について研究を進めた。

研究成果の概要（英文）：

Two methods that enable us to calculate the electronic structure of systems with topological disorder from first-principles are developed. One is suitable for systems that have weak topological disorder such as crystals with frozen phonons. The other is for systems with strong topological disorder. Amorphous and liquid metals are the examples of the latter. Using the former, the effects of the electron-phonon scattering on the electrical conductivity are successfully calculated. For the latter various singularities arising in the electron Green's function have been clarified and the method to avoid them are investigated.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	2,800,000	840,000	3,640,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・数理物理・物性基礎

キーワード：トポロジカル不規則、第一原理電子状態計算、KKR グリーン関数法、CPA 法、フォノン励起、電子フォノン散乱

## 1. 研究開始当初の背景

機能性材料や半導体デバイス材料の多くは混晶・合金であり不規則性を内包している。このような不規則性は、アンダーソン局在や輸送現象、競合する相互作用をもつ磁性合金のように、それが本質的な場合も多い。このような不規則性の内、基本となる格子構造に不規則性はないが、そこを占める原子や局所状態（局所磁気モーメント等）が不規則であるような置換型不規則についてはこれまで多くの研究がなされてきた。しかし、基本と

なる格子構造に不規則性が存在する（トポロジカル不規則性、topological disorder）場合については確立された手法が存在しない。トポロジカル不規則性の重要性は良く認識されており、有限サイズシミュレーションやモデル計算によりその評価がなされているが、正しくトポロジカル不規則性を考慮し、かつ原子の個性をパラメータにたよらず反映することのできる第一原理計算手法は知られていない。現実の不規則系は多かれ少なかれ格子緩和を伴っており、その意味では完全な置

換型不規則系は存在しないが、トポロジカル不規則性を扱う実際的な手法が知られていないため、あえてこれを無視してきた。

## 2. 研究の目的

真の不規則性を表現できない有限系シミュレーションやスーパーセル法などを用いずにトポロジカル不規則性を有する金属・合金、混晶の第一原理電子状態計算を可能にする手法を開発する。これによって、あらゆる不規則系に多少とも内在するトポロジカル不規則性を無視することなく不規則系をあつかえるようになることと、トポロジカル不規則性が本質的に重要な系や、液体金属、アモルファス、有限温度フォノン系等のこれまで困難であった系の電子状態計算が、第一原理にもとづいて行えるようになる。

## 3. 研究の方法

不規則系の性質は単一の構造を持つ系では記述することができない。構造の揺らぎを平均化したとき現れる性質が、不規則系の普遍的な物性を表すからである。トポロジカル不規則性を伴わない場合にはグリーン関数法 (KKR 法) とコヒーレント・ポテンシャル近似を組み合わせる (KKR-CPA) ことによって、シングルサイト近似の枠内ではあるが、高い精度で配置平均を実行することができる。KKR-CPA 法は  $t$  行列にのみ不規則性がある場合に適用できる手法でありトポロジカル不規則性には適用することができない。トポロジカル不規則性を考えるために、2つの極限的な場合を考える。(i) 配置平均をとったあとには一つの結晶構造をもつ格子となる場合。(ii) 配置平均をとったあとには結晶構造が消失する場合。前者は格子緩和をもった合金・混晶や静的近似におけるフォノン、後者は液体金属や十分高温から急冷されたアモルファスに対応する。それぞれの極限で正しくなる2つのアプローチを考える。(i) の場合に対するアプローチとしてトポロジカル不規則性を持つ格子を規則格子にマップしトポロジカル不規則性は本来不規則性を持っていなかった  $t$  行列の不規則性にマップする。(ii) の場合に対しては、 $t$  行列はそのままにして、構造グリーン関数が大きなトポロジカル不規則性を持つとして配置平均の結果は等方的なコヒーレント構造グリーン関数で記述する。これらの方法を定式化した上で、第一原理からの数値計算が可能な計算機コードを開発する。

## 4. 研究成果

有限系シミュレーションやスーパーセル法などを用いずにトポロジカル不規則性を有する金属・合金、混晶の第一原理電子状態計算を可能にする手法を開発することが目

的である。本研究においては2つの異なったアプローチによって、トポロジカル不規則性を第一原理電子状態に取り入れる手法を開発した。1つは、「弱いトポロジカル不規則」を扱うものであり、格子を作る原子の位置が不規則に変位したような場合を取り扱う。変位が格子間隔に比べて小さい(数十%以下)場合を想定して、変位ベクトルでポテンシャル散乱行列を展開する形で定式化を行い、そのような変位がある場合の配置平均をとった電子状態を精度良く、また効率良く計算することに成功した。この方法を用いた応用として、有限温度におけるフォノン効果やマグノン効果を取り入れた電子状態計算を行うとともに、伝導率の計算を行うことによって電子フォノン散乱およびマグノン散乱の影響を取り入れた電気伝導の温度依存性を計算することに成功した。第2の方法はアモルファスや液体金属のように大きなトポロジカル不規則性が有る場合であり、これを扱うために KKR グリーン関数法における構造グリーン関数の配置平均を、等方性を仮定して実行する手法を開発した。開発の途中、浅野らによる先行研究があることに気づき、第一段階としては浅野らの手法の検討を行った。その結果、この手法を直接使いようとする、多くの特異点が現れることがわかった。これらの特異性は定式上キャンセルし、最終結果には影響を与えないはずのものではあるが、数値計算の上では多くの困難が引き起こすことがわかった。この点を改良するための新たな方法の開発に着手するとともに、そのための計算機コードを開発中である。また、浅野らの手法では原子ポテンシャルはおおきなトポロジカル不規則があるにもかかわらず、その影響を取り入れることを許さないものである。ここにも不規則性を入れる定式化を行った。

第一の方法を用いて、フォノン散乱およびマグノン散乱の影響について具体的な計算を行った例について報告する。ここではマグノン散乱が電気伝導に与える影響の結果について説明するがフォノン散乱についても同様な評価が可能である。このような散乱は原子配列が化学的不規則性を持たないが、スピン方向が幾何学的な不規則を示すために生じる。(FeCr)Se<sub>2</sub>は反強磁性ハーフメタルという特異な性質を示す物質であり、磁化を持たないにもかかわらずスピンの対称性が破れ、フェルミ面でのスピン分極が100%となる系である。しかし有限温度においてはスピン方向がゆらぐために、ハーフメタルの性格が壊される筈である。このことが電気伝導に与える効果を評価した。計算では、まず、磁気点移転以下における各温度で、スピン方向がどのようなウェイトを持っているかを、第一原理計算に基づく交換相互作用  $J_{ij}$  の計算

により評価することによって不規則性を決定する。この情報をもとにスピン方向に関する配置平均をとる。このような平均操作はフォノン散乱と同時に実行されるが、ここではマグノン散乱の影響を考える。図1に磁化と反対方向のスピンが0、2、5、10%存在するときの状態密度を示す。10%は磁気転移温度を $T_N$ として $T/T_N=0.2$ 程度に相当する。このような低温ですでにハーフメタルとしての性格は完全に失われていることがわかる。

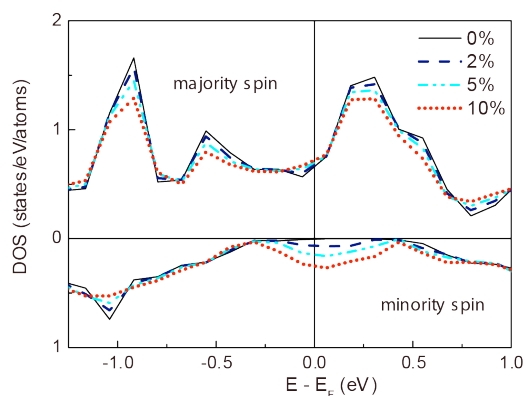


図1

一方、対応する状態におけるスピン依存電気伝導を計算した結果を図2にまとめる。

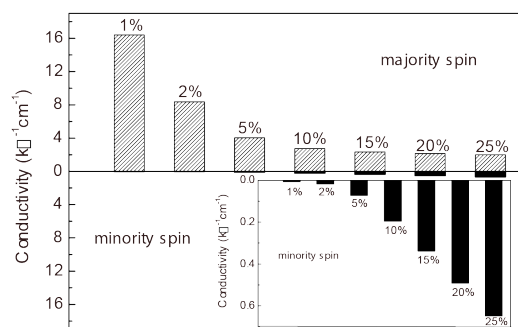


図2

図の上半分は多数スピンによる電気伝導度、下半分は少数スピンによる電気伝導度である。少数スピンによる電気伝導度のみスケールアップしたのもインセットに示されている。この結果は温度が $T/T_N=0.6$ 程度の高温になっても、電気伝導におけるスピン分極が非常に高く保たれていることを示している。これはフォノン散乱の効果を入れても全く同様な結論を得る事ができる。ハーフメタルの性質が失われるにもかかわらず、電気伝導においては高いスピン分極が保持され

る理由は、スピン不規則（マグノン励起）によって生じたフェルミ面における少数スピン状態はCrとFeのd状態がスピン不規則によって混成した状態であり、非常に強い電子マグノン散乱を伴うため、電気伝導に寄与できないからである。

これらの成果は学術論文②として発表された。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計2件)

① M. Ogura and H. Akai, First-principles KKR-CPA calculation of the magnetic and transport properties of  $\text{La}_{1-x}\text{X}_x\text{MnO}_3$  ( $\text{X} = \text{Ca}, \text{Sr}$ ), *Journal of Physics: Condensed Matter*, 査読あり, **24**, 2012, 455501 1-6.

② N.H. Long, M. Ogura, and H. Akai, Effects of spin-wave excitation in half-metallic materials, *Physical Review B*, 査読あり, **85**, 2012, 224437 1-6.

[学会発表] (計3件)

① 高成柱, 小倉昌子, 赤井久純, 有効媒質近似を用いたトポロジカル不規則系の電子状態計算, 日本物理学会 第68回年次大会, 2013年3月26日~2013年3月29日 広島大学

② M. Ogura and H. Akai, First-principles calculation of the magnetic and transport properties of  $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ , The 2<sup>nd</sup> Osaka University and University of Groningen Collaboration Symposium (招待講演), 2012年11月26日~2012年11月28日 大阪

③ M. Ogura, N.H. Long, and H. Akai, First-principles calculation of transport properties of half-metallic systems, Core-to-Core Groningen Workshop 2012 (招待講演), 2012年11月18日~2012年11月21日 Groningen, The Netherlands

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

○取得状況（計0件）

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

〔その他〕  
ホームページ等  
なし

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

赤井 久純 (AKAI HISAZUMI)  
大阪大学・その他部局等・名誉教授  
研究者番号：70124873

### (2) 研究分担者

小倉 昌子 (OGURA MASAKO)  
大阪大学・大学院理学研究科・助教  
研究者番号：30397640

### (3) 連携研究者

なし