

基礎工学研究科 物理系専攻 物性物理学分野 固体理論講座



研究室紹介

鈴木 直*

Area of Solid State Theory, Division of Materials Physics,
Department of Physical Science, Graduate School of Engineering Science

Key Words : First-principles calculation of electronic state, Magnetism,
Superconductivity, High pressure physics

1. はじめに

基礎工学研究科の大学院重点化にともなって大講座制になり、物理系専攻・物性物理学分野の固体理論講座には私の研究グループと張教授の研究グループが属している。今回紹介するのは私の研究グループの研究内容についてである。

重点化前の私の研究グループには磁性理論講座という名前がついていた。基礎工学部創設以来の講座で、私が三代目の教授である。初代が永宮健夫名誉教授で、二代目が望月和子名誉教授である。永宮先生は磁性理論に限らず物性理論の分野で国内において指導的な役割を果たされてきた理論家の一人であり、磁性理論においては、反強磁性共鳴の理論、ヘリカル磁性の理論など、先駆的かつ世界的レベルの研究をされた。ただし、対象となった磁性体は、原子上に電子スピンの局在している化合物磁性体(局在スピンの系)である。望月先生の時代には、化合物磁性体も研究対象ではあったが、スピンの原子上に局在していない金属(遍歴電子系)における磁性の研究に重心が移っていった。特に第一原理的な電子状態計算(バンド計算)に基づいた金属磁性の微視的理解が主題となった。さらに、磁性にとどまらず、遷移金属ダイカルコゲナイドにおける電荷密度波転

移、遷移金属ダイカルコゲナイド層間化合物の電子状態と結合様式、立方晶酸化物超伝導体の格子振動と超伝導物性の研究へとすそ野が広がった。

私の時代になってからも磁性は研究の大きな柱であるが、グループ全体の主たる研究内容は、「電子状態、格子振動、電子格子相互作用の第一原理計算に基づく物性理解と物性予測」と言い表わすことができる。研究のキーワードは、磁性、超伝導、極限物性などであり、研究対象物質は磁性半導体、金属間化合物、遷移金属、遷移金属化合物、分子性結晶など多岐にわたる。望月先生の時代と比較すると、電子状態のみならず、格子振動や電子格子相互作用も第一原理的に取り扱うようになったこと、さらには有機結晶まで含めた分子性結晶も研究対象とするようになったことが新機軸である。

なお、研究室の現在の構成員は、スタッフが私と白井正文助教授、大学院生が13名(博士3名、修士10名)、4年生4名の計19名である。

2. 研究内容と展望

我々が行っている第一原理電子状態計算は、いわゆる局所密度汎関数近似に基づくバンド計算である。用いている具体的な計算法は、フルポテンシャルLAPW法とフルポテンシャルLMTO法であり、最近では擬ポテンシャル法も使用し始めている。また、第一原理バンド計算以外には、ハバードハミルトニアンやスピンハミルトニアンの厳密対角化法、さらにはスピンハミルトニアンに対する有功場近似法が主な計算法である。以下に、現在のグループの主な研究内容をいくつかの項目に分類して具体的に説明する。



* Naoshi SUZUKI
1945年11月12日生
昭和48年東京大学大学院理学研究科
博士課程修了
現在、大阪大学大学院・基礎工学研
究科、教授、理学博士、物性理論
TEL 06-6850-6405
FAX 06-6845-4632
E-Mail suzuki@mp.es.osaka-u.
ac.jp

(1) 極限物性

極限物性、特に超高压下における物性は、現在もっとも力を入れている研究課題の一つである。極限物性に興味を持つようになった一つの理由は、物性物理学分野の天谷教授の研究室が非常に興味ある重要な実験データを続々と出し始めたことである。他の理由としては、次の二つの背景を挙げることができる。まず第一に、物質の示す多様な物性は、一つには、電子の運動エネルギーと電子相関エネルギーが競合していることに起因しているが、超高压を加えることは両者の相対的大きさを大きく変化させることになり、新しい物性現象の発現や、ひいては、新機能性物質の創製につながるものと期待される。第二に、極端条件下の実験では、技術的な制約上、得られる情報はかなり少ないので、この難点を補うのに第一原理的な理論計算が非常に有効である。

我々が最近特に注目して研究を行っているのは、分子性結晶である固体酸素の超高压下における物性である。酸素分子 O_2 は等核2原子分子の中で唯一スピン($S=1$)をもっている分子である。固体酸素は常圧低温では絶縁体で反強磁性を示すが、圧力を加えることにより逐次構造相転移を起し、90 GPa付近で絶縁体-金属転移を示した後100 GPa以上ではさらには超伝導転移¹⁾も観測されている。固体酸素の圧力誘起金属化を考えた場合、最も興味深い点は、(1)分子性結晶を保ったまま金属化するのか?、(2)金属化の際、酸素分子のスピンモーメントすなわち磁性がどうなっているのか?、である。

固体酸素の圧力誘起金属化の振る舞いを理論的に解明するために、フルポテンシャルLMTO法で、反強磁性および強磁性状態の電子帯構造と全エネルギーを、体積の関数として計算した。得られた重要な結果は、以下の通りである²⁾：(1)圧力増加に伴って、分子性結晶を保ったままバンドオーバーラップによる金属化が起こり金属磁性状態が実現される、(2)さらに、圧力が増加すると、約100 GPa以上で、反強磁性、強磁性ともに解がなくなり、連続的に金属常磁性状態に移行する、(3)スピンモーメントは、バンドオーバーラップ後は単調に減少し、常磁性金属状態へと移行したときに完全に消失する。従って、約100 GPa以上では、分子性の常磁性金属状態が実現されていると結論される。

ただし、絶縁体-金属転移においてはバンド計算では十分に考慮されない電子相関の効果が重要であ

ると考えられるので、その効果を見るのが今後の重要な課題である。また、観測されている超伝導転移温度 T_c は0.6 Kで、他のVI族元素のTe, Se, Sの超高压下での T_c と比較して著しく低いとその起源は何か、分子性結晶から単原子結晶へはどの程度の圧力で転移しさらに単原子相での T_c はどの程度になるか、これらのことを解明するための研究が現在進行中である。

固体酸素以外の物質としては、リン、バナジウム、鉄、ゼノンなどを取り上げて、これらの物質における圧力誘起複合相転移(構造相転移、絶縁体-金属転移、磁気転移、超伝導転移が相関をもって起こる転移)を解明する研究も現在進行中である。

(2) 磁性半導体超構造

近年、閃亜鉛鉱型III-V族化合物半導体をベースとした希薄磁性半導体(In, Mn)As, (Ga, Mn)Asが分子線エピタキシーにより作製され、共に強磁性を示すことが見出されている。我々は $Ga_{1-x}Mn_xAs$ ($x < 0.07$)が示す強磁性の機構を明らかにする目的で、Mn濃度 x が1, 1/2, 1/4, 1/8に対し超格子構造を仮定して、その電子帯構造を第一原理的に計算した。その結果我々が始めて明らかにした重要な結論は次のようにまとめられる：(1)強磁性状態が反強磁性状態に比べて安定である、(2)強磁性状態はハーフ・メタリックである、すなわち、フェルミ準位が少数スピン・バンドのエネルギー・ギャップ内に位置して半導体的になっているのに対し、多数スピン状態のバンドは金属的になっている、(3)As原子位置にはMn原子とは逆向きの磁気モーメントが誘起されており、Mnスピンと価電子スピンの相互作用は反強磁性的である³⁾。

$Ga_{1-x}Mn_xAs$ 以外では、反強磁性半導体MnTeのTeをSbで置換した、閃亜鉛鉱型Mn(Sb, Te)混晶系の電子状態の計算も行っている。その結果によれば、Sb原子での置換により、価電子バンドにキャリア(正孔)が導入され、最近接Mn原子間に強磁性的な有効交換相互作用が生じることが確かめられ、ある程度Sb組成を高くするとMn(Sb, Te)は強磁性になる可能性が得られた。また、MnAs/GaAs(001)多層膜の電子状態の計算を行い、伝導に寄与するキャリア(正孔)の空間分布は強磁性層内及びヘテロ構造の界面付近に偏っており、非磁性(GaAs)層が正孔にとって障壁となっている結果も得ている。

これら一連の研究の最終目的は、磁性半導体超構

造の電子物性、スピン物性を生かした新機能デバイス開発の指針を与えることである。なお、ここで述べた磁性半導体超構造に関する研究成果は白井助教が中心となって得たものである。

(3) 軌道縮退系の磁性

最近、Mn酸化物に代表される軌道縮退系の物性が興味を持たれているが、我々が軌道縮退系の研究を始めたのは高いキュリー温度をもつ有機強磁性体の開発指針を得る目的からである。一般的な指針はここで述べないが、有機強磁性体TDAE-C₆₀の強磁性発現機構に関しては、電荷移動誘起分子内ヤーンテラー(CTJT)歪みと分子間協力ヤーンテラー(CJT)歪みの二種類の格子歪による発現機構を提案した⁴⁾。これは、C₆₀のLUMO軌道が三重に縮退しているためC₆₀ではラグビーボール状へのCTJT歪みが起こり、この歪んだC₆₀がCJT歪みを起こしてある適当な配向を結晶全体でとることにより強磁性が発現するモデルである。

他にはK₂CuF₄に代表される軌道整列強磁性体に対する圧力効果に関する研究を行い、反強磁性的歪みを保ったままで圧力誘起高スピン-低スピン転移の起こり得ることを初めて示し⁵⁾、さらに現在は、LiNiO₂に代表される三角格子軌道縮退系における電荷・軌道・スピンの整列状態にかんする研究が進行中である。

(4) 擬一次元磁性体

一次元量子スピン鎖は、顕著な量子効果によりエキゾチックな物性を示すため興味を持たれているが、現実の系では鎖間相互作用が無視できない場合が多い。我々はS=1/2交換相互作用交替鎖に的を絞り、鎖間相互作用を有効に取り入れることのできる方法論を開発した。

一つは有限スピン鎖に対する厳密対角化法を用いて、温度と波数に依存した帯磁率を求め、得られた結果を用いて鎖間相互作用を平均場で取り扱う方法である。この方法で鎖間効果による磁気秩序を議論し、現実に相転移が観測されているいくつかの反強磁性-強磁性交替系の鎖間相互作用を定量的に評価することに成功した⁶⁾。

他の一つは、相関を考慮したペア有功場近似⁷⁾で交換相互作用交替スピン鎖の帯磁率や磁気励起を求

め、鎖間相互作用はやはり平均場で取り扱う方法である。この方法は取り扱いが簡単な上に広い交替比領域で厳密対角化に近い結果を与え、また、三次元系にも容易に適用できるという利点をもつ。事実、この方法はスピンペアが三次元的に配列したKCuCl₃の帯磁率や磁気励起を定量的に説明することに成功している。

その他、交換相互作用交替スピン系やスピンペア系でよく観測されている本来禁止遷移のESRスペクトルを説明するために、ジャロシンスキー-守谷相互作用を考慮した理論を展開するなど、局在スピン系の研究も途切れることなく続いている。

3. おわりに

理論家としてあるいは理論の研究室として、単に実験結果の説明や解釈に終わるだけでなく、新しい物性を予測しさらには新しい物理を作り上げていきたい、その過程の中でできれば応用につながるような成果をあげたい、こういう気持ちを常に持ちながら研究を続けてはいるが、なかなかその夢を実現できないのが現実である。しかし、あきらめることなく、「確固とした実験事実立脚し、種々の実験結果を統一的に理解しつつ新しい物理を作り上げていこう」という永宮先生時代からの精神はずっと持ち続けていきたいと考えている。

4. 参考文献

- 1) K. Shimizu *et al.* : Nature 65 (1998) 767.
- 2) M. Otani *et al.* : J. Phys. : Condens. Matter 10 (1998) 11603.
- 3) M. Shirai *et al.* : J. Magn. Magn. Mater. 177-181 (1998)1383 ; *ibid.* 196-197 (1999) 428.
- 4) T. Kawamoto and N. Suzuki : Synthetic Metals 86 (1997) 2387.
- 5) T. Kawamoto and N. Suzuki : J. Phys. Soc. Jpn. 67 (1997) 2487.
- 6) S. Kokado and N. Suzuki : J. Phys. Soc. Jpn. 67 (1997) 3605.
- 7) S. Kokado and N. Suzuki : J. Magn. Magn. Mater. 196-197 (1999) 566.