



Title	研究室紹介：基礎工学部物性物理工学科望月研究室
Author(s)	望月, 和子
Citation	大阪大学大型計算機センターニュース. 1991, 81, p. 73-77
Version Type	VoR
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/65924">https://hdl.handle.net/11094/65924</a>
rights	
Note	

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

## 基礎工学部 物性物理工学科 望月研究室

当研究室は「磁性物理講座」で、磁性理論を中心とし、さらにそれに関連した物性分野の興味ある課題をとりあげて基礎的な研究を行っている。研究室編成は現在のところ教授、助教授、助手に加えて大学院博士課程後期生3名、前期生8名と学部の卒研生6名である。本研究室では種々の化合物結晶の電子状態を第一原理に基づくバンド計算によって求め、その結果に基づいて磁性、構造相転移、超伝導現象を微視的に解明することを目的としているので、大型計算機に依るところが非常に大きい。主な研究課題は次のようなものである。

- (1) 酸化物超伝導体における電子格子相互作用と超伝導の理論
- (2) 遷移金属ダイカルコゲナイト・インターラーション化合物の電子状態と物性
- (3) 金属間化合物の電子状態と磁性
- (4) 摂一次元電荷移動錯体における非線形励起
- (5) 基底一重項磁性体における相転移と磁気励起

これらの研究の概要を以下に記す。

### 1. 酸化物超伝導体における電子格子相互作用と超伝導の理論

立方晶ペロブスカイト型構造をもつ酸化物  $Ba_xK_{1-x}BiO_3$  (BKB) は遷移金属元素を含まない酸化物超伝導体としては最高の超伝導転移温度  $T_c = 30$  K ( $x \sim 0.7$ ) を示す。銅元素を含まず、二次元性をもたないこの物質の超伝導を、従来のフォノンを媒介とするペアリング機構によって説明できるか否かを明らかにすることは、高温超伝導体の超伝導機構解決のためにも重要である。

我々は超伝導機構の解明を目的として、まず BKB の電子帯構造に基づいて電子格子相互作用係数  $V$  の波数およびモード依存性を調べ、ブリージングモードに対応する  $A_{1g}$  フォノンモードに対してブリルアンゾーンの広い範囲の電子状態に対して  $V$  は最も大きな値をとることを見出した。次に電子格子相互作用を媒介として生じる長距離力もとり入れて格子振動を求め、フォノン振動数のソフト化を見出した。さらに、計算で得られた電子格子相互作用と格子振動の結果を用いてスペクトル関数を求め、Eliashberg方程式に基づいた強結合理論に従って  $T_c$  の値、 $T_c$  の同位元素効果、絶対零度における超伝導ギャップを計算した。これらの計算結果はいずれも実験結果とよい一致を示し、両者の間の

矛盾はない。また、計算で得られたギャップ関数を用いて微分伝導率  $dI/dV$  と  $d^2I/dV^2$  を求めたが、結果はトンネルスペクトルの測定結果とよい対応を示した。

以上のようにBKBの超伝導状態における種々の性質はフォノンを媒介とするペアリング機構によって理解できる。1990年12月にメキシコで開かれた国際シンポジウム「Symposium on Manifestation of Electron-Phonon Interaction in Copper Oxides and Related Superconductors」に招待を受けて出席し、BKBに関する我々のグループの研究について講演を行ったが、BKBに対する我々の結果は出席者全員によって支持された。さらに同様な考察を  $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$  についても行っている。

## 2. 遷移金属ダイカルコゲナイト。インターラーション化合物の電子状態と物性

層状遷移金属ダイカルコゲナイト  $\text{TX}_2$  (T: 遷移金属、X: カルコゲン) は三角格子を作るTの層とこれを上下からはさむXの層からなるサンドイッチが積層した層状化合物で、X原子がT原子を正八面体的に囲む1T型と、プリズム型に囲む2H型のものがある。これらの層状物質は、電荷密度波 (CDW) の形成を伴う整合・不整合構造相転移や超伝導を示すものが多く、多様な物性を示す興味ある物質群として我々を含む国内外の研究グループによって実験・理論両面から活発な研究が進められてきた。とりわけ我々のグループによる電子状態に基づく構造相転移や格子振動に関する微視的理論は注目を受け1986年には「Structural Phase Transitions in Layered Transition Metal Compounds」(editor: 望月) の著書がReidel社から出版された。さらに、これらの層状物質はその層間に種々の原子や分子を侵入させて新しい機能をもつ層間化合物を開発するという応用的観点からも注目されている。これらの層状および層間化合物の物性の解明には電子状態を正しく把握することが不可欠である。我々の研究室では1T型  $\text{TiS}_2$ 、およびそれに3d遷移金属原子をインターラートした  $\text{M}_x\text{TiS}_2$  ( $\text{M}=\text{V}, \text{Cr}, \text{Mn}, \text{Fe}, \text{Co}, \text{Ni}$ ;  $x=1/3, 1$ )、また2H型  $\text{TaS}_2$  およびそれにMnをインターラートした  $\text{Mn}_{1/4}\text{TaS}_2$  などの電子帯(バンド)構造を自己無接着APW法を用いて計算し、M原子の違いによる電子状態の変化を系統的に調べている。また侵入原子と母体との結合の強さや様式を明らかにするためにボンドオーダーの考察もおこなっている。

バンド計算の結果によれば侵入原子の3d状態はSの3p状態およびTiの3d状態とよく混成して2-3eVの巾をもつバンドを形成している。従って侵入原子Mの3d状態を局在スピンモデルで扱うことは適当でなく、遍歴系として扱わなければならないことが明白となった。事実、強磁性を示す  $\text{Fe}_{1/3}\text{TiS}_2$  の強磁性状態のバンド計算をおこなって求めた磁気モーメントの値は測定結果とよい一致を示している。さらに侵入原子が3d遷移金属以

外のAgやLiなどの場合についても研究を進め、電気的、光学的に新しい機能をもつ物質設計の指針を得たいと考えている。

### 3. 金属間化合物の電子状態と物性

遷移金属元素を含むいわゆる金属間化合物の研究は歴史が古く世界的にも多くのグループでとりわけ実験研究が精力的につみ重ねられ、強磁性、反強磁性、ヘリカル磁性など、物質によって異なる多彩な磁気配列と、常磁性帯磁率や体積の温度変化にみられる異常な振舞いに古くから関心がよせられてきた。従来は、これらの物質の磁性は局在モデルにたった分子場理論で議論されてきたが、我々はイオン性より共有性の強い金属間化合物では、磁性に重要な役割を担う3d電子を電子相関のかなり強い退歴電子として捉えることが妥当と考え、バンドを出発点としてこれにスピンのゆらぎの効果を取り入れて磁性の解明をめざして研究をつづけている。

特徴ある物質群としてNiAs型ブニクタイドおよびカルコゲナイト、Cu<sub>2</sub>Sb型化合物 (Mn<sub>2</sub>As, Mn<sub>2</sub>Sb, Cr<sub>2</sub>As, CrMnAs, Fe<sub>2</sub>As, MnFeAs, MnAlGe, MnGaGe)、立方晶ペロブスカイト型化合物 (Mn<sub>3</sub>GaC, Mn<sub>3</sub>ZnC, Mn<sub>4</sub>C, Mn<sub>4</sub>N)、Cu<sub>3</sub>AuおよびCuAu型化合物 (Mn<sub>3</sub>Pt, Fe<sub>3</sub>Pt, Fe<sub>3</sub>Pd, FePt<sub>3</sub>, FePt) をとりあげ、それぞれ一連の化合物のバンド計算を行い、その結果に基づいて磁性および構造変化を微視的かつ統一的に解明するための研究をつづけている。NiAs型化合物 Mn, Fe, Co, Ni-アルセナイトについては、NiAs型からMnP型への構造変化の可否の理由、常磁性帯磁率の温度変化の異常、多彩な磁気配列などは、電子帯構造の物質によって異なる特徴をとり入れることによって説明できることを明らかにした。他の物質群についてもかなり計算は進行し、磁性の本質が明らかになりつつある。これらの計算はいずれもself-consistent APW法によるもので、単位胞に異なる種類の原子を多数含む場合を扱うので膨大な計算であり大型計算機の使用なしには不可能である。

### 4. 摂一次元電荷移動錯体における非線形励起

摂一次元的な電荷移動錯体（例えば、ハロゲン架橋遷移金属錯体やアルカリ-TCNQ塩等）及び導電性ポリマー（例えば、ポリアセチレンやポリチオフェン等）は大きな誘電定数や高次光学定数を持ちまた非線形電気伝導を示すものも多く、新しい機能を持つ光学材料やエレクトロニクス材料の開発という観点から応用的に大変重要な物質である。また、上記の非線形光学現象や電気伝導にはソリトンやポーラロンといった新しい概念の非線形励起状態が重要な役割を担っていると考えられており、理論的にも非常に興味ある物質である。

我々のグループでは、遷移金属  $M$  (= Pt, Pd, Ni 等) とハロゲン  $X$  (=Cl, Br, I) が交互に並んだハロゲン架橋遷移金属錯体を研究対象として、ソリトンやポーラロンに関する光吸収スペクトルの研究を進めてきた。この系は、良質な単結晶作成が可能で理想的な擬一次元  $MX$  鎖を得ることができること、また  $M$  や  $X$  の違いにより電子間相互作用と電子格子相互作用の相対的大きさが異なり多様な物性を示すことから大変興味深い系である。

モデルハミルトニアンを有限鎖に対して厳密に対角化する方法により、ソリトンおよびポーラロンの形状および局在電子状態が電子格子相互作用や電子間相互作用の強さによってどのように変わるかを系統的に調べ、同時にソリトンやポーラロンに関する光吸収スペクトルを計算して光学的にソリトンとポーラロンを区別する指針を得ることができた。その結果、ハロゲン架橋白金錯体  $[Pt(en)_2][Pt(en)_2Cl_2](ClO_4)_4$  ( $en$ =エチレンジアミン) で観測されている光誘起吸収はポーラロンによるものであることが明らかにされた。

## 5. 基底一重項磁性体における相転移と磁気励起

基底一重項磁性体とは、单一イオンとしての基底状態が縮退していない磁性イオンからなる磁性体を指す。その代表的な例は、 $RFeX_3$  ( $R=Rb, Cs$ ;  $X=Cl, Br$ ) である。これらの物質で磁性を担っている  $Fe^{2+}$  イオンは有効スピン  $S=1$  でよく記述され、 $DS_z^2$  の一イオン型異方性エネルギーをもつためその基底状態は一重項 ( $S=0$ ) である。また、 $Fe^{2+}$  のつくる一次元鎖が三角格子を組んでいるため、これらの磁性体は擬一次元磁性体として、また三角格子磁性体として注目を集めている。

基底一重項磁性体の大きな特徴は、交換相互作用と一イオン型異方性エネルギーの比がある値以上のときにのみ秩序状態を示し、無秩序状態から秩序状態への転移はある特定の磁気励起 (マグノン) エネルギーのソフト化によって引起されることである。我々のグループでは DCEF (Dynamical Correlated-Effective-Field) 法と呼ばれるスピン相關を考慮した有効場近似を開発し、それに基づいて  $RFeX_3$  における相転移と磁気励起を詳しく研究してきた。その結果、上記の DCEF 法は三次元積分を含む自己無撞着方程式を解く必要があるため通常の平均場近似より計算はやや面倒ではあるが、定量的議論に非常に有効であることが明らかにされた。特に、 $RbFeCl_3$  については実験で観測されている転移温度、磁気励起の分散およびその温度変化、磁場誘起相転移、磁場下での磁気励起等を定量的かつ統一的に説明することに成功している。

当研究室の特色は、実際の物質に結びついて、興味ある諸物性を電子状態に基づく微視的理論によって解明しようとする点にある。スタッフ一同は新しい機能をもつ物質開発のための理論面からの手がかりを探ろうと言う目的意識を常にもって研究に取り組んでいる。学生も一人一人がテーマをもち、スタッフや学生同志と活発な議論を行いながら、各自が研究の遂行に責任をもって研究成果をあげることに努力している。これらの研究成果は大型計算機に負うところが多く、大型計算機の使用なしには到底不可能であったような理論計算も可能となり、その成果は国内のみならず国際的にも注目されている。大型計算機センターの諸氏には色々な面で大変お世話になっている。この紙面を借りて厚くお礼を申し上げたい。

（望月和子 記）