会場 F

領域 7, 8, 9, 10

F-1 第一原理計算による分子性導体 β'-(BEDT-TTF)$_2$ICl$_2$ の低エネルギー格子振動の解析

熊本大 [A], J-PARC[B], 東京電機大 [C], 総合科学研究機構 [D], 埼玉大 [E], 東北大金研 [F] 圓谷貴夫[A], 河村聖子 [B], 中惇 [C], 松浦直人 [D], 谷口弘三 [E], 佐々木孝彦 [F]

擬二次元分子性導体 β'-(BEDT-TTF)$_2$ICl$_2$ (BEDT-TTF= bis(ethylenedithio)tetrathiafulvalene) は、22 K 以下で反強磁性秩序を示すダイマー型 Mott 絶縁体である [1]。J-PARC の AMATERAS を用いた非弾性中性子散乱実験では、広い波数・エネルギー領域にわたるフォノンスペクトルが観測され、特に 36 meV 以下の領域において、明瞭な光学フォノンモードと音響フォノン分散が確認されている。近年の測定により、これらのフォノンモードの散乱強度が結晶軸方向に強く依存することが明らかになりつつある。

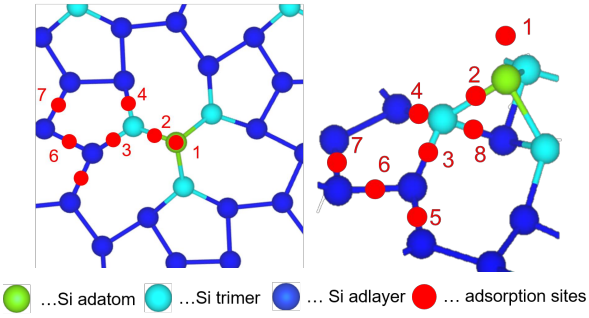
本研究では、非弾性中性子散乱実験との比較および散乱強度の起源の解明を目的として、第一原理計算により β'-(BEDT-TTF)$_2$ICl$_2$ のフォノン分散および固有ベクトルを評価した。さらに、得られたフォノン情報を用いて動的構造因子 $S(\mathbf{Q},\omega)$ を計算し、非磁性状態と反強磁性状態の散乱強度スペクトルを比較した。計算には、実験で報告されている三斜晶 $P\bar{1}$ 構造（単位胞当たり 55 原子）を用いた。反強磁性状態については BEDT-TTF ダイマー上の磁気モーメントが反平行に配列する秩序を表現するため、b 軸方向に単位胞を 2 倍とした $1\times2\times1$ の磁気スーパーセル（110 原子）を構築した [2]。第一原理フォノン計算では、この磁気スーパーセルをさらに c 軸方向に 3 倍した、330 原子からなる $1\times2\times3$ スーパーセルを用いた。反強磁性状態について得られた原子間力定数を、非磁性状態と共通の 55 原子セルに対応するブリルアンゾーンに展開し、同一の波数経路および波数点数を用いて散乱強度を比較した。その結果、非磁性状態および反強磁性状態から得られた $S(\mathbf{Q},\omega)$ は、実験で観測された特徴的なスペクトル形状を概ね再現した。また、反強磁性状態では、いくつかのエネルギー領域において散乱強度の増大が認められた。本講演では、磁気秩序にともなうフォノンスペクトルの変化と散乱強度の結晶軸依存性について報告する。

[1] M. Tokumoto et al., Synth. Met. 19, 215 (1987). [2] T. Tsumuraya, T. Miyazaki, and H. Seo, J. Phys. Soc. Jpn. 93, 123704 (2024).

F-2 第一原理計算による SiC(0001)-3 × 3 再構成表面初期酸化の安定化起源の解明

九工大工 [A] 野村素心[A], 制野かおり [A]

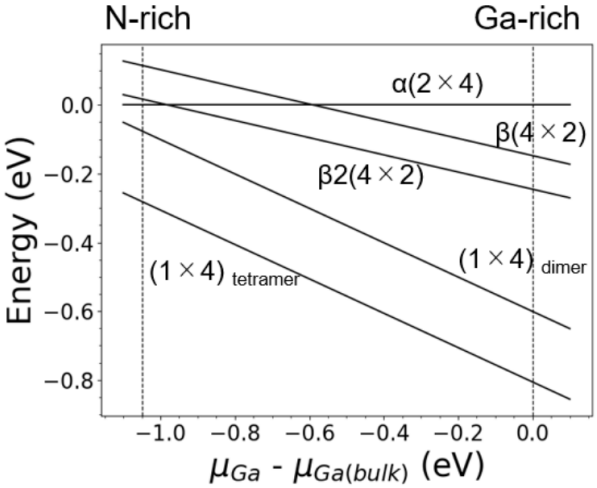
次世代パワー半導体材料である SiC を用いた MOS デバイスでは、酸化界面近傍の炭素関連欠陥に起因する高い界面準位密度がチャネル移動度を低下させることが知られている。本研究では、界面準位密度低減に向け、表面に炭素原子を含まない Si-rich 条件で最安定な 4H-SiC(0001)-(3 × 3) 再構成表面を界面に用いる界面形成を目指す。そこで、酸化膜形成の起点となる初期酸化過程を第一原理計算により解析した。Si adatom のバックボンドへの酸素吸着が最も安定であり、バックボンド酸化を主体とする構造が広い被覆率範囲にわたって最安定となった。また、4/9 ML では実験から提案されている構造よりも安定な構造を見出した。さらに、CI-NEB 法により、その形成機構を検討した。



F-3 第一原理計算による閃亜鉛鉱型 GaN(001) 表面の再構成機構と電子状態

九工大工 [A] 住原陸斗[A], 制野かおり [A]

GaN は、パワーデバイスや光電子デバイスへの応用が期待されるワイドバンドギャップ半導体である。現在実用化されている GaN デバイスの多くはウルツ鉱型が用いられる一方で閃亜鉛鉱型の表面構造は十分に解明されていない。本研究では、閃亜鉛鉱型 GaN(001) 表面を対象に、第一原理計算により表面再構成の安定性と電子状態を評価した。Ga テトラマー、ダイマー、理想表面および GaAs(001) 由来の計 9 種類の構造について、Ga の化学ポテンシャルに対する表面形成エネルギーを比較した。その結果、Ga-rich から N-rich の全領域で (1 × 4) テトラマー構造が最安定となり、GaAs(001) とは異なる傾向を示した。また、バンド構造と状態密度、STM 像の解析から、表面 Ga 原子に由来する局在電子状態の形成とバンドギャップの減少を確認した。今後は振動自由エネルギーを考慮し、表面再構成の熱依存性を評価する。



F-4 第一原理計算による hcp Mg および Mg－ Zn－ Y 系 W 相の電子・格子熱伝導の解明

熊本大学大学院 [A], 熊本大学 MRC[B] 三木田野佳[A], 圓谷貴夫 [B]

Mg 合金は実用構造用金属材料の中で最も軽量であり、輸送機器の軽量化に資する材料として注目されている。近年では、軽量化に加え、放熱性に優れた高熱伝導材料の開発も求められている。特に、α-Mg (hcp) 母相と、BCC 型ホイスラー構造を有する W 相 ($Mg_3Zn_3Y_2$) から構成される Mg–Zn–Y 系合金は、高強度と高熱伝導度を併せ持つことが報告されている [1]。しかし、本系の熱伝導度に対する W 相の寄与や、hcp Mg と W 相の熱伝導特性の違いは明らかになっていない。そこで本研究では、第一原理計算により、hcp Mg と W 相の熱伝導度をフォノンと電子の寄与に分離して評価した。格子熱伝導度は、有限変位法により 2 次および 3 次の原子間力定数を求めて算出した [2]。電子熱伝導度は、密度汎関数摂動理論と最局在 Wannier 関数を用いた補間により電子–フォノン相互作用から電子の緩和時間を算出し [3,4]、得られた平均緩和時間を用いて定緩和時間近似のもとで Boltzmann 輸送方程式から求めた。その結果、hcp Mg と W 相のいずれにおいても、電子の寄与が大きく、W 相は電子・格子熱伝導度ともに hcp Mg より低いことがわかった。本講演では、W 相の電子熱伝導度が低下する要因を、電子状態と電子–フォノン散乱の観点から議論する。

[1] Y. Wang, S. Inoue, and Y. Kawamura, Mater. Trans. 65 1358–1366 (2024).
[2] A. Togo, L. Chaput, and I. Tanaka, Phys. Rev. B 91 094306 (2015).
[3] N. Marzari, and D. Vanderbilt, Phys. Rev. B 56 12847 (1997).
[4] S. Poncé, E. R. Margine, C. Verdi, and F. Giustino, Comput. Phys. Commun. 209, 116–133 (2016).

F-5 X 線回折 3 次元逆空間マッピングによる強誘電体ドメイン構造解析

九大院システム情報 [A] 宮田翔[A], 片山慶太 [A], 薮田久人 [A]

近年、X 線用二次元検出器および計算機の性能向上により、大量の X 線回折データを用いた三次元逆空間マッピングが可能となり、二次元の測定断面では捉えきれないピーク分裂などの特徴を立体的に把握できるようになった。強誘電体など、結晶方位の異なるドメイン（分域）を有する材料では、ドメイン構造に起因する回折ピークの分裂が逆空間上で観察されることがある。この分裂形態の解析は結晶構造が未知の材料の晶系を推定する手掛かりとなる。本研究では、強誘電性が報告されている一方で、結晶構造の詳細に議論が残る $BiFeO_3$－ $BaTiO_3$ 固溶体の単結晶を対象に三次元逆空間マッピングを行い [1]、回折ピークの分裂形態に基づいて晶系を検討した。$BaTiO_3$ のモル分率が 0.37 の試料では図に示すピーク分裂が観察され、菱面体晶の領域の存在が示唆された。

[1] Yabuta et al., Appl. Phys. Lett. 116, 252902 (2020)

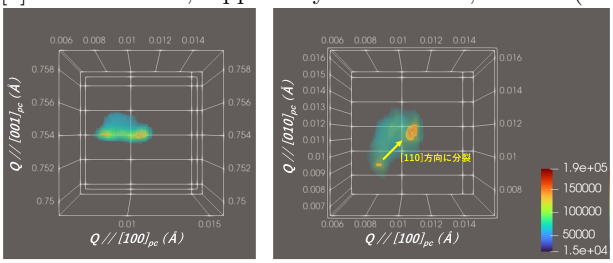


図 $0.63BiFeO_3$－$0.37BaTiO_3$ $(003)_{pc}$ 回折ピークの分裂形態

F-6 MPMS3 用 ^{3}He インサートの開発

九大院工 [A], 九大院理 [B], 岡山理科大 [C] 伊藤大[A], 高橋修二郎 [A], 蓮尾斉彦 [A], 山口恭平 [A], 河江達也 [A], 光田暁弘 [B], 稲垣裕次 [C]

カンタムデザイン社から市販されている SQUID 磁束計 MPMS(Magnetic Property Measurements System) は 1.8 K ≦ T ≦ 400K という広い温度範囲で、磁化を高精度かつ簡便に測定できる装置として、世界中で広く利用されている。その後継機として、約 10 年前より MPMS3 の販売が開始された。これにともない、旧型 MPMS シリーズのサポートは本年 9 月をもって終了する予定である。我々はこれまで、旧型 MPMS 装置と自作の 3He インサートを組み合わせることで、T = 0.5K までの低温領域において [1]、希土類化合物などの磁化測定を行ってきた [2]。しかし旧型装置のサポート終了にともない、低温域での高精度磁化測定を継続するためには MPMS3 に対応した 3He インサートを開発する必要となる。以上のような背景より、我々は新型の MPMS3 に装着可能な 3He インサートの開発を行っている。なお、旧型の MPMS 装置と新型の MPMS3 では測定時の試料駆動方法が全く異なるため、3He インサートの構造も大きく異なる設計となる。試料取り付け用のロッドは本インサート内部に装着され、この状態で MPMS3 本体へ取り付けられる。また、温度計は試料マウント用プレートに取り付けて温度測定を行う。講演では詳細な構造および測定時の問題点について説明する予定である。

[1] Y. Sato et al., Jpn. J. Appl. Phys. 52, 106702 (2013).
[2] T. Kawae et al., J. Phys. Soc. Jpn. 82, 073701 (2013).

F-7 ベイズ推論によるトポロジカル近藤絶縁体 SmB6 の高精度スピン分極率評価

九大院工 [A], 高知大理工 [B], 東大新領域 [C], 茨城大院理工 [D] 内藤叶登[A], 志賀雅亘 [B], 山根将聖 [C], 山口広 [C], 片上舜 [C], 岡田真人 [C], 伊賀文俊 [D], 河江達也 [A]

多くの物質で見られる特異な電子物性を深く理解するためには、フェルミエネルギー近傍の電子状態測定は重要である。特に今回の研究ではトポロジカル絶縁体のスピン分極率に注目する。スピン分極率は、フェルミエネルギーにおけるアップスピン状態密度とダウンスピン状態密度の差によって定義される。そのため、スピン分極率を精密に評価することは、物質の磁気的性質やバンド構造を理解する上で極めて重要である。スピン分極率を測定する実験手法の一つとして、点接合アンドレエフ反射分光（PCARS）法が知られている。PCARS 法では、超伝導探針と試料を微小な接触面積で接合し、界面で得られる微分伝導度スペクトルを拡張 Blonder-Tinkham-Klapwijk（m-BTK）モデルによって解析することで、スピン分極率を見積もる。しかし、m-BTK モデルには、接合部における電子輸送の散乱状態に応じて Ballistic（弾道伝導）極限と Diffusive（拡散伝導）極限の 2 種類の物理モデルが存在する [1]。したがって、スピン分極率を高精度に評価するためには、スペクトル解析に対して適切な物理モデルを選択する必要がある。従来、このモデル選択は経験則に基づいて行われることが多く、客観的な判断基準は十分に確立されていなかった。そこで本研究では、数理科学的手法の一つであるベイズ計測に着目した。ベイズ計測では、ベイズ自由エネルギーを評価することで、実験データの解析に最適なモデルを統計的かつ客観的に選択することができる。本研究では、この手法をトポロジカル近藤絶縁体 SmB_6 の PCARS 実験で取得したスペクトルに適用し、スピン分極率の高精度推定を試みた。講演では、得られた解析結果の詳細について報告する。[1] I. I. Mazin, et al., J. Appl. Phys. 89, 7576 (2001).

F-8 ソフトポイントコンタクト法を用いた $CeRu_2Si_2$ の微分伝導度測定

九大院工 [A], 高知大理工 [B], 東北大金研 [C], 都立大 [D] 髙橋修二郎[A], 内藤叶登 [A], 高橋拓也 [A], 寺本翼 [A], 志賀雅亘 [B], 青木大 [C], 大貫惇睦 [D], 河江達也 [A]

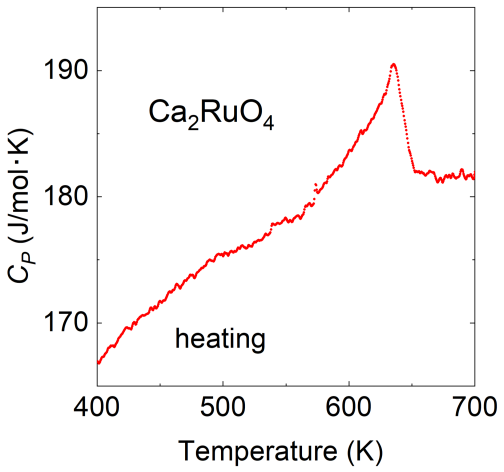
重い電子系物質では、磁場や圧力などの外場により伝導電子と f 電子の混成 (c-f 混成) 強度を変化させることで基底状態が変化する。特に $CeRu_2Si_2$では H〜$7T$ の外部磁場を印加することでメタ磁性転移することが知られている。我々は、この現象に関して微視的観点から調べるため磁場下でのフェルミエネルギー近傍の電子状態測定を目指している。これまで、我々の研究室では点接合分光 (PCS) 法を用いた重い電子化合物の電子状態測定を行ってきた。PCS 法では、探針と試料を微小面積で接触させた状態で微分伝導度 (dI/dV) を測定し、電子状態密度を直接観測する。実際、$CeRu_2Si_2$の PCS 実験を行い、$c-f$ 混成に起因した近藤共鳴状態の観測に成功した [1]。一方、PCS 法では、試料と探針を機械的に接触させているため、外場下での実験が困難である。従って、高磁場下での電子状態測定には、PCS 法とは異なる実験手法が必要となる。そこで、我々は、ソフトポイントコンタクト ($SPCS$) 法に注目した。$SPCS$ 法では、探針と試料を導電性ペーストで固着させた状態で dI/dV 測定を行うため、高磁場下での電子状態測定が可能であると考えられる。本実験では、$CeRu_2Si_2$(001) に Cu 線を導電性ペーストで固着することで接合を作成し $SPCS$ 実験を行った。　本実験で得られた dI/dV 信号を解析した結果、信号が混成ギャップを反映していることがわかった。この $SPCS$ 実験で得られた dI/dV 信号の温度依存性などの結果について発表する。

[1] T. Takahashi et al., J. Phys. Soc. Jpn. 93, 023704 (2024).

F-9 モット絶縁体 Ca_2RuO_4 の高温比熱測定

久留米工大　教育創造工学科 [A], 久留米工大　基幹教育センタ [B] 小向得翔大[A], 中村関羽 [A], 小倉弘幹 [B], 井野明洋 [A], 中村文彦 [A]

室温でモット絶縁体である Ca_2RuO_4 を昇温すると，360 K で *S-Pbca* から *L-Pbca* 相へ構造相転移し金属化する。さらに昇温し，650 K になると *L-Pbca* から *Bbcm* 相へ構造相転移する．しかし，400 K を超える温度域での比熱は測定されていないため，この相転移の詳細は明らかになっていない。そこで本研究では，微小試料で潜熱を伴う 1 次相転移を含めて比熱の絶対値を測定できる示差走査熱量計 (DSC) を用いて，300-750 K 温度範囲の比熱を測定した。図が示すように，$C_P(T)$ 曲線は 650 K に 2 次相転移に特徴的なブロードなピークを示す。また，ピークの面積から，相転移に伴うエントロピー変化は約 1 J/(mol・K) と見積もられるが，これは $R\ln 2$(約 5.76) よりかなり小さいため，650 K での *L-Pbca* から *Bbcm* 相への構造相転移は，RuO_6 八面体の回転 (傾き) が連続的に消失する変位型の 2 次相転移であると推測される。

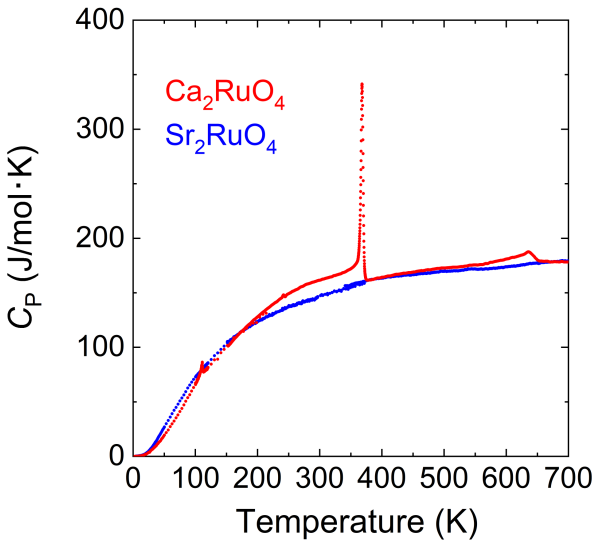


F-10 モット絶縁体 Ca_2RuO_4 の熱力学的解析

久留米工大 基幹教育センター [A], 久留米工大 教育創造工学科 [B] 小倉弘幹[A], 中村関羽 [B], 小向得翔大 [B], 井野明洋 [B], 中村文彦 [B]

モット絶縁体 Ca_2RuO_4 (CRO) では，113 K で反強磁性転移，360 K で S-*Pbca* から L-*Pbca* への構造変化を伴う金属転移，650 K で *Bbcm* への構造相転移が出現する．しかし，これらの相転移の熱力学的整合性は議論されていない．そこで，熱緩和法，示差走査熱量測定などを用いて 3-700 K で CRO の比熱を測定し，各相転移を熱力学的に解析した．

CRO と同型で構造変化のない Sr_2RuO_4 と比較して，CRO の比熱異常を評価した．その結果，113 K 以下の反強磁性秩序で減少したエントロピーは，200-360 K の金属化と 650 K の構造相転移に伴い回復する．これらすべてのエントロピーの収支を合わせると系全体で釣り合う．また，1 次転移とされていた 360 K の比熱異常は 1 次転移的な鋭いピークと 2 次転移的なブロードピークから成る．当日はこのブロードピークの起源も報告する．



F-11 ダブルペロブスカイト型酸化物 La_2NiMnO_6 の単結晶育成と熱電特性評価

鹿児島大学理工学研究科 [A], 鹿児島大学工学部 [B] 道添雄輝[A], 宮坂拓臣 [A], 梅野航 [B], 奥田哲治 [A,B]

ダブルペロブスカイト型酸化物 La_2NiMnO_6 では、Ni と Mn はそれぞれ Ni^{2+} ($3d^8$：$t_{2g}^6e_g^2$、$S=1$) と Mn^{4+} ($3d^3$：$t_{2g}^3e_g^0$、$S=3/2$) の価数状態をとり、Goodenough－ Kanamori 則に基づく強磁性的超交換相互作用により、強磁性転移温度 T_C が約 280 K の強磁性絶縁体となることが知られている。また、この物質にホールドープすると、Ni^{2+} の一部が Ni^{3+} に酸化され、ハーフメタル状態が実現する可能性が第一原理計算によって指摘されている。[1] しかし、実際の元素置換では、電子状態の変化に加えて構造的な乱れも生じるため、両者の物性への寄与を分離することが難しく、ハーフメタル化は未だ実験的に直接実証されていない。

本研究では、浮遊帯域溶融法（FZ 法）を用いて、La_2NiMnO_6 および La^{3+} の一部を二価陽イオンで置換した物質の単結晶育成を試みる。得られた結晶について、磁気特性ならびに熱電特性を系統的に調べ、ホールドープによるハーフメタル化の可能性と、優れた熱電特性を示す可能性を検証することを目的とする。

[1] B. Kim, et al., Phys. Rev. B 81, 224402 (2010).