

研究責任者名 Name	小嶋 健児 Kojima Kenji	所属機関 Affiliation	高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所
受理番号 Proposal No.	大型 13/14-09	研究課題名 Program title	第一原理計算を用いた結晶中のミュオン位置計算シミュレーション

研究を終了しましたので、下記の通り報告します。

本課題は、物質中のミュオンスピン緩和を用いた物性実験 (μ SR) の解釈に避けて通れない、ミュオンの結晶中の位置に関する情報を、密度汎関数法 (DFT) を用いた第一原理計算で予測し、J-PARC を始めとする大型加速器を用いたミュオン実験の解釈に寄与することを目的としている。本年度の成果は以下の通りである。

(1) ハートレーポテンシャル (HP: 密度汎関数法で求めた電子密度からのクーロンポテンシャル和) を用いて、鉄砒素系超伝導体 La-1111-Hx のミュオンサイトを決定し、実験データの解釈に用いた。

(2) HP を用いて、層状電子化物 Y2C のミュオンサイトを決定し、超微細構造定数を計算することにより、高磁場下のミュオンナイトシフトの値を実験結果と比較した。

(3) 鉄砒素系超伝導体 La-1111-Dx の余剰水素原子に対するポテンシャルを分子動力学を用いて計算し、HP によるミュオンサイト計算 (1) の妥当性を検証し、さらに中性子非弾性散乱の解釈に用いた。

以上の結果を踏まえ、平成 26-27 年度課題 (14/15-13) を申請し、受理されている。

This project is aimed to predict the muon site in a crystal structure, which is necessary to understanding muon spin relaxation (μ SR) measurement performed at large accelerator facilities, such as J-PARC. We employed density functional theory (DFT), which has been casually used in determination of electronic structures. This year, we performed the following calculations:

(1) We determined muon site of iron pnictide superconductor La-1111-Hx using Hartree potential (Coulomb sum from the electron density) and compared with beam experimental results.

(2) We determined muon site of two-dimensional electride Y2C and calculated hyperfine parameter between muon and electrons. The result was compared with muon knight shift measured at high magnetic fields.

(3) We confirmed validity of muon site calculation (1) with molecular dynamics (MD) of hydrogen introduced in La-1111-Hx. The same result was used for interpretation of neutron inelastic scattering measurement.

As a continuation, a new project (14/15-13) has been accepted and is underway.

研究成果を公開しているホームページアドレス

not yet available

研究成果の 公表	口頭研究発表 件数	査読つきの 学術論文数	プロシーディング 論文数	その他 (投稿中を含む)
	2	1	0	2

成果の公表リスト（それぞれの枠に番号をつけて記入願います。）

口頭研究発表 Presentations at scientific meetings concerning the program									
1. 「 μ SR 測定から見た CeFeAsO $_{1-x}$ H $_x$ の磁氣的基底状態(II)」平石雅俊他 日本物理学会 2014 年秋季大会 2. “Bipartite Magnetic Parent Phases in the Iron Oxypnictide Superconductor”, K.M. Kojima <i>et al.</i> J-PARC symposium 2014 (invited).									
査読付きの学術論文(雑誌名等には 巻、頁、発表年を記載) (*) 不足する場合には追加願います。 Refereed Journal Articles (name of journal, volume, page, year)									
1	<table border="1"> <tr> <td>著者名 Author</td> <td>M. Hiraishi, S. Iimura, K. M. Kojima, J. Yamaura, H. Hiraka, K. Ikeda, P. Miao, Y. Ishikawa, S. Torii, M. Miyazaki, I. Yamauchi, A. Koda, K. Ishii, M. Yoshida, J. Mizuki, R. Kadono, R. Kumai, T. Kamiyama, T. Otomo, Y. Murakami, S. Matsuishi & H. Hosono</td> </tr> <tr> <td>タイトル title</td> <td>“Bipartite magnetic parent phases in the iron oxypnictide superconductor”</td> </tr> <tr> <td>雑誌名 name of journal</td> <td>Nature Physics 10 300–303 (2014).</td> </tr> <tr> <td>URL</td> <td>doi:10.1038/nphys2906</td> </tr> </table>	著者名 Author	M. Hiraishi, S. Iimura, K. M. Kojima, J. Yamaura, H. Hiraka, K. Ikeda, P. Miao, Y. Ishikawa, S. Torii, M. Miyazaki, I. Yamauchi, A. Koda, K. Ishii, M. Yoshida, J. Mizuki, R. Kadono, R. Kumai, T. Kamiyama, T. Otomo, Y. Murakami, S. Matsuishi & H. Hosono	タイトル title	“Bipartite magnetic parent phases in the iron oxypnictide superconductor”	雑誌名 name of journal	Nature Physics 10 300–303 (2014).	URL	doi:10.1038/nphys2906
著者名 Author	M. Hiraishi, S. Iimura, K. M. Kojima, J. Yamaura, H. Hiraka, K. Ikeda, P. Miao, Y. Ishikawa, S. Torii, M. Miyazaki, I. Yamauchi, A. Koda, K. Ishii, M. Yoshida, J. Mizuki, R. Kadono, R. Kumai, T. Kamiyama, T. Otomo, Y. Murakami, S. Matsuishi & H. Hosono								
タイトル title	“Bipartite magnetic parent phases in the iron oxypnictide superconductor”								
雑誌名 name of journal	Nature Physics 10 300–303 (2014).								
URL	doi:10.1038/nphys2906								
2	<table border="1"> <tr><td>著者名</td><td></td></tr> <tr><td>タイトル</td><td></td></tr> <tr><td>雑誌名等</td><td></td></tr> <tr><td>URL</td><td></td></tr> </table>	著者名		タイトル		雑誌名等		URL	
著者名									
タイトル									
雑誌名等									
URL									
3	<table border="1"> <tr><td>著者名</td><td></td></tr> <tr><td>タイトル</td><td></td></tr> <tr><td>雑誌名等</td><td></td></tr> <tr><td>URL</td><td></td></tr> </table>	著者名		タイトル		雑誌名等		URL	
著者名									
タイトル									
雑誌名等									
URL									
プロシーディング論文(雑誌名等には 巻、頁、発表年を記載) (*) 不足する場合には追加願います。 International Conference Proceedings (name of journal, volume, page, year)									
1.	<table border="1"> <tr><td>著者名 Author</td><td></td></tr> <tr><td>タイトル title</td><td></td></tr> <tr><td>雑誌名等 name of journal</td><td></td></tr> <tr><td>URL</td><td></td></tr> </table>	著者名 Author		タイトル title		雑誌名等 name of journal		URL	
著者名 Author									
タイトル title									
雑誌名等 name of journal									
URL									
2.	<table border="1"> <tr><td>著者名</td><td></td></tr> <tr><td>タイトル</td><td></td></tr> <tr><td>雑誌名等</td><td></td></tr> <tr><td>URL</td><td></td></tr> </table>	著者名		タイトル		雑誌名等		URL	
著者名									
タイトル									
雑誌名等									
URL									
3.	<table border="1"> <tr><td>著者名</td><td></td></tr> <tr><td>タイトル</td><td></td></tr> <tr><td>雑誌名等</td><td></td></tr> <tr><td>URL</td><td></td></tr> </table>	著者名		タイトル		雑誌名等		URL	
著者名									
タイトル									
雑誌名等									
URL									
その他 (学位論文、紀要、投稿中の論文を含む) (著者、タイトル、論文種別、URL を記載) Others (thesis for a degree, bulletin, papers to be published, etc.)									
1. K.M. Kojima <i>et al.</i> , “Electronic structure of 2D electrider Y2C”, refereed paper, URL: not yet available 2. H. Hiraka <i>et al.</i> , “Quantum tunneling of deuterium in iron pnictide superconductor La-1111-Dx”, refereed paper, URL: not yet available									
特記 (本研究に関係した、新聞記事・著作、受賞など) (過去に遡っても構いません。) Special Notes (newspaper article, literary works, awards, etc.)									
1. 2.									

物質に対する密度汎関数法 (DFT) を用いた第一原理計算で最も基本的な計算手順は、与えられた原子配置と擬ポテンシャル中で運動する電子のエネルギー最適化である。これにより電子密度が計算され、ハートレーポテンシャル (最適化された電子密度からのクーロンポテンシャル和) が計算出来る。この計算は物質のパラメータ (構成元素と座標) だけで実行可能で、正ミュオンを試験電荷として電子系への影響がないと仮定した場合の安定点を求めることができる。

図1に鉄砒素超伝導体LaFeAs(O,H)に置けるハートレーポテンシャル計算を示す。図中のローブがハートレーポテンシャルの極大点で、正ミュオンに対する安定点となる。電荷の導入 (O→FやHへの置換) により、各ミュオン安定位置のポテンシャルの深さは変化するが、Fe周りの位置座標は変化しないことが示された。また、この物質は、ネール温度を持ち、ミュオンスピン緩和測定で、内部磁場が観測される。ハートレーポテンシャルによって決定されたミュオンサイトにおいて、鉄サイトに局在した磁気モーメントが作る双極子磁場の計算と観測された内部磁場を比較することにより、局在モーメントの大きさが見積られ、参考文献[1]におけるミュオン実験結果の解釈に供された。

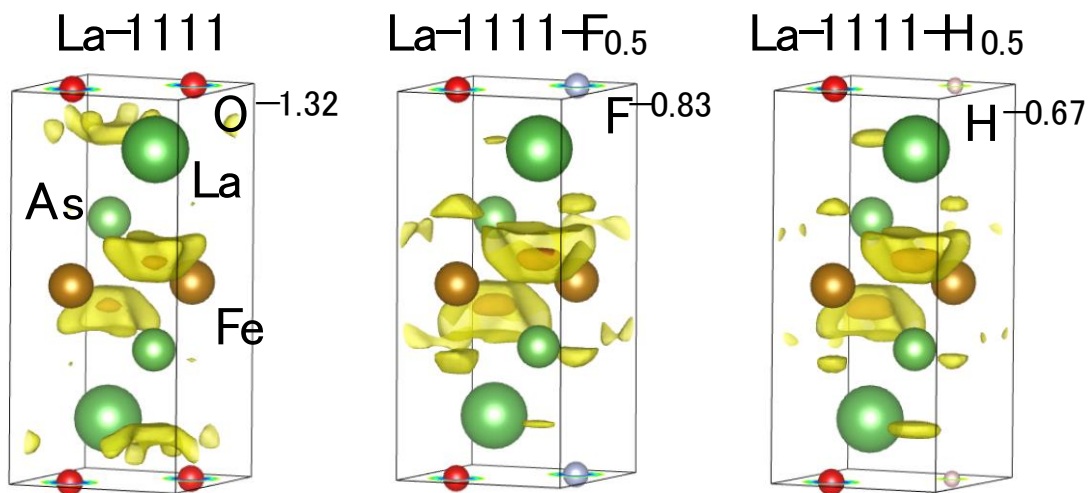


図1 : LaFeAs(O,F,H)のハートレーポテンシャル計算 (等ポテンシャル面)。ローブの中心が安定ミュオン位置である。各元素に元素に書いてある電荷状態はBader charge解析で求めたものである。

同様のハートレーポテンシャル計算を層状電子化物Y2Cに対して行い、ミュオンの安定点を求めた。それは、ロンボヘドラル格子構造の空いた対称点となり、層状電子軌道の中心に位置する。DFT第一原理計算コードVASPを用い、その安定点にミュオンを導入した場合の電子との超微細構造定数を求めた。この計算は、ミュオンの存在により電子系が受ける変化を繰り返す必要があり、また、並進対称性を仮定出来ない希薄極限にあるミュオン測定を再現するためスーパーセルを設定する必要があった。この超微細構造定数の値とカナダのミュオン施設TRIUMFで測定したミュオンナイトシフトと比較することにより、Y2Cの電子構造に関する知見を得ている[2]。

本プロジェクトの計算結果を発展させて、中性子非弾性散乱の結果の解釈につながりつつある。

重水素ドーピングした鉄砒素超伝導体La-1111-Dxの中性子非弾性散乱により、この物質中の水素の拡散現象が観測されている。水素とミュオンの類似性（電子に対してはどちらも+e電荷）から、図1で計算されたハートレーポテンシャルを、水素自身の存在を繰り込んだ電子系の計算に精度を上げ、水素の自己無撞着ポテンシャルを計算した。図2にその結果を示す。

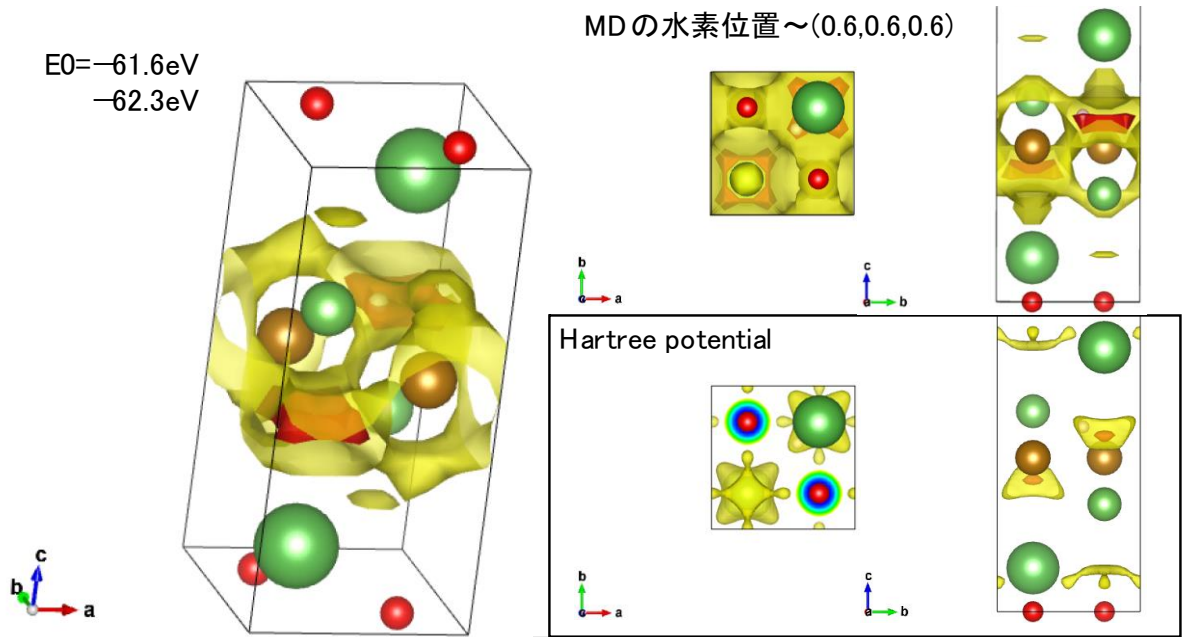


図2：LaFeAsO中の水素に対する自己無撞着ポテンシャル（電子系の全エネルギー）マッピング。左図は鳥瞰図、右図は各軸方向から見た自己無撞着ポテンシャル（上）とハートレーポテンシャル（下）。

ハートレーポテンシャルでは安定点が単純な1重井戸構造だったが、自己無撞着ポテンシャルでは中心部は不安定で、四角いドーナツ型のポテンシャル形状となる。安定点の間を結ぶ直線上で自己無撞着ポテンシャルを計算した結果が図3である。深さが115meV程度の2重井戸構造になっている。

一方、分子動力学を用いると、軽水素の2重井戸中の古典的振動数が直接求まり、その値は $h\nu=276\text{meV}$ （水素）であった。これはポテンシャル井戸の底を調和近似した場合の周波数である。量子力学では、ゼロ点振動エネルギーとポテンシャル深さの大小関係が束縛状態を作れるか否かの境目であるが、この調和近似での軽水素のゼロ点振動エネルギーは、 $1/2 h\nu=138\text{meV}$ で、ポテンシャルの深さ115meVより大きくなる。さらにミュオンでは質量が軽水素の1/9のためさらにゼロ点振動エネルギーが大きくなり（ $1/2 h\nu=138/\sqrt{(105/938)}=412\text{meV}$ ）両者とも2重井戸構造には束縛されない可能性が高い。一方、重水素では、ゼロ点振動エネルギーが $138/\sqrt{2}=98\text{meV}$ となり、束縛される可能性が出てくる。

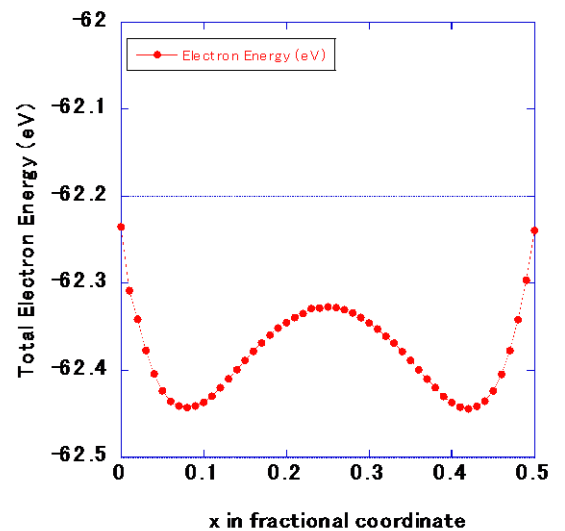


図3：LaFeAsO中の水素無撞着ポテンシャル

中性子非弾性散乱で測定した試料は重水素ドーピングの試料であり、重水素の拡散現象が観測にかかっている可

能性が示唆されている[3]。現在、観測されたトンネル周波数と理論計算の整合性を検証中である。また、この計算例は、ミュオンの質量の軽さにより、自己無撞着ポテンシャルの微細構造を無視出来る位ゼロ点振動が大きくなり得て、その意味で、CPU時間が少なくてすむハートレーポテンシャルでミュオンサイト位置を議論することの妥当性を示している。

13/14-09のまとめ

物質中のミュオン（または水素）の安定位置計算、という目的のため、CPU負荷の小さいハートレーポテンシャルから分子動力学、最もCPU負荷の大きな自己無撞着ポテンシャルマッピングへと計算精度を上げるに従い、どのような局面でどの自由度・精度が重要であるか、本年度では明らかになって来た。この結果を論文にまとめつつ、来年度では継続課題（14/15-13）でさらに発展させて行く予定である。

Reference

- [1] M. Hiraishi *et al.* Nature Physics, **10**, 300 (2014).
- [2] K.M. Kojima *et al.* in preparation (2014).
- [3] H. Hiraka *et al.* in preparation (2014).