

Q-carbon の強磁性に関する第一原理計算

First-principles calculations on the ferromagnetism in Q-carbon

岡山大基礎研¹, 岳 強¹, 横谷 尚睦¹, 村岡 祐治¹

Okayama Univ. RIIS.¹, Qiang Yue¹, Takayoshi Yokoya¹, Yuji Muraoka¹,

E-mail: p37126c5@s.okayama-u.ac.jp

新たな炭素系物質 Q-carbon はレーザーアニーリング法による非平衡プロセスの中で形成される [1]。Q-carbon は高 sp^3 量 (75%–85%) を有し、室温で飽和磁化 $0.4 \mu_B/\text{atom}$ の強磁性を示すことが知られている [2]。強磁性のメカニズムに関しては、理論 [3] [4] において 3.4 g/cm^3 以下の密度を持つ系で計算がなされているが、実験結果を説明できる結論には至っていない。近年、実験により Q-carbon の密度は 5.0 g/cm^3 であることが報告された [5]。この値はダイヤモンド (3.5 g/cm^3) や従来の理論計算における系の密度よりも大きい。高い密度を持つ系での計算に興味を持たれる。そこで本研究では、高密度を有する非晶質炭素体 ($5.24, 5.46, 5.63 \text{ g/cm}^3$) に注目して、スピン制限第一原理計算を実施した。また、本研究では従来の計算研究とは異なり、Q-carbon が形成される過程を模して、液体状態にある系を指数関数 $T = 5000e^{-\alpha t}$ (T : 温度、 t : 時間) に従って急冷し室温構造を得た。この構造を基にして総磁気モーメントを固定しながら構造最適化を行った。シミュレーションは第一原理計算ソフトウェア CP2K [6] で実施した。

計算の結果、平均原子磁気モーメントを $0.4 \mu_B/\text{atom}$ 、密度を 5.63 g/cm^3 に設定した時に、 sp^3 量が 72.1% の系を達成できることを見出した。 sp^3 量を考慮すると、この系は Q-carbon と見なしてよい。また、各原子サイトにおける局所磁気モーメントを調べた結果、この系の総磁気モーメントは主に sp^2 混成状態にある炭素原子に由来することが分かった。加えて、配位数の異なる炭素原子の空間分布の解析から、この系内の sp^2 原子には主に 2 種類の形態があることが判明した。これらの sp^2 原子上に存在する孤立電子が強磁性の起源になっていると考えられる。

参考文献

- [1] J. Narayan *et al.*, *Apl. Mater.* **3**, 100702 (2015). [2] J. Narayan *et al.*, *J. Appl. Phys.* **118**, 215303 (2015). [3] Y. Sakai *et al.*, *Phys. Rev. Mater.* **2**, 074403 (2018). [4] B. Thakur *et al.*, *Diam. Relat. Mater.* **121**, 108725 (2022). [5] R. Sachan *et al.*, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **12**, 1330 (2020). [6] T.D. Kühne *et al.*, *J. Chem. Phys.* **152**, 194103 (2020).