二酸化ウランおよびガンマ鉄のノンコリニア常磁性状態の第一原理計算

First-principles Calculations of Non-colinear Parmagnetic States in Uranium Dioxyde and Gamma Iron

*板倉　充洋[1]，沖田 泰良[2]，中村 博樹[1]
[1]JAEA，[2]東大

原子力材料の中で磁性状態の再現が困難なため第一原理計算があまり行われない二酸化ウランとガンマ鉄について、ランダムに分布するノンコリニアな磁性状態を用いた計算の収束性等について議論する。

キーワード：第一原理計算

1. 緒言

鉄および二酸化ウランは原子力分野で重要な材料であるが、各原子が磁性スピンをもっているため、第一原理計算においてスピン分極を考慮に入れなければ正しい結果が出ないことが知られている。アルファ鉄の場合は全ての鉄原子のスピンが同じ方向を向いた強磁性状態が 1000K 付近まで維持されるため、第一原理計算においてもそのようなスピン分極状態を用いて計算を行うことができる。しかし高温でのガンマ鉄や常温でのオーステナイト鋼のような面心立方格子構造をもつ鉄の場合、常磁性状態にあるため各原子にスピン分極を持たせつつそれぞれの方向をランダムに設定した状態で計算する必要がある。またクロム濃度の高いフェライト鋼の場合にも常温で複雑な磁性状態が現れる。その場合、スピンの向きを例えば Z 方向に限定し、＋Z 方向と－Z 方向の二種類のスピンをランダムに配置する方法がまず考えられる。さらに、現実のスピンは三次元方向を自由に向くこと、また二酸化ウランの計算において導入が必須であるスピン軌道相互作用を取り入れるとスピンの向きとして三次元方向を考慮する必要があることなどを考えると、三次元の色々な方向をランダムに向いたスピン配置を用いるという方法もある。現実をより忠実に模擬しているという意味では後者が望ましいが、三次元的な、ノンコリニアなスピン状態の計算には通常の４倍程度の計算時間が必要となる。したがってコリニアなスピン配置とノンコリニアなスピン配置の計算コストの違い、収束性、求める物性値の違いなどを評価しどちらを使用するかを決めることが望ましい。

2. 計算結果

計算は FCC 鉄(Fe32)と蛍石型 UO2(U32O64)について行った。ランダムなスピン配置は、コリニアな場合は二つの向きを二元合金のように考え、Special Quasi-Random Structure (SQS)と呼ばれる配置を用いて作成した。ノンコリニアな配置については、方向を１２種類の<110>方向に限定し、これを１２元合金と考え同様に SQS 配置を作成して計算を行った。ノンコリニアな場合、スピンの向きが構造緩和とともに徐々に変化する傾向があり収束性が悪くなった。これを防ぐため、スピンの方向が初期の方向からずれた場合にペナルティを課す計算を行ったところ、良好な収束性が得られた。スピン軌道相互作用を入れた場合、二酸化ウランではスピンが<110>方向を向きやすく、鉄では特に向きやすい方向はなかった。またスピン軌道相互作用の有無は特に二酸化ウランにおいて格子定数に影響があったが、鉄においては影響が無視できた。

3. 結論

二酸化ウランの計算においてはスピン軌道相互作用を入れることが望ましく、そのためノンコリニア状態を採用することになる。スピン軌道相互作用の計算自体のコストは無視できるものであるため、ノンコリニア状態を用いるメリットがあると考える。一方でガンマ鉄の場合は結果にそれほど影響がないためコリニアな計算で十分であると考えられる。

*Mitsuhiro Itakura[1] , Taira Okita[2] and Hiroki Nakamura[1]
[1]JAEA, [2]U.Tokyo