

課題名 (タイトル):

## 第一原理計算による分子性導体の高圧下電子状態

利用者氏名:

○藤山 茂樹

上田 康平

所属:

加藤分子物性研究室

### 1. 本課題の研究の背景、目的、関係するプロジェクトとの関係

固体物質の電子状態の理解の一手法である第一原理計算は、近年パッケージが整備され、実験研究者にも手の届くものとなっている。特に、分子性導体においては、計算結果としてはき出される電子のエネルギー分散関係が、実験で観測される巨視的物性をよく説明すると受け入れられている。

これまでの研究は主として、合成や測定の実験研究者による実験がある程度進捗した後に第一原理計算による計算が行われ、実験をサポートしてきた。第一原理計算が当該研究分野を主導しているとは言いがたく、実際に試料合成や分光学的測定に従事している研究者が時に応じて第一原理計算を活用することで、より効率的な研究を遂行できる可能性がある。

本課題では、計算科学を専門とする研究者が関心を持たないような物質や、分光学的パラメータについて、第一原理パッケージを用いた計算を行い、物質設計の指針を得ることを目的とする。

### 2. 具体的な利用内容、計算方法

第一原理計算パッケージとしてPWscfを用い、ウルトラソフト擬ポテンシャルを用いた電子状態計算を行った。電子のエネルギー分散関数を計算するのみならず、得られた電子状態密度を用いた後工程として原子核と電子の間にはたらく超微細結合定数の見積もりを行った。

計算リソースとしてはMPCを用い、多くの計

算は4~8ノードを占有することで実行した。

### 3. 結果

(Cation)[Pt(dmit)<sub>2</sub>]<sub>2</sub> はこれまで 200K 付近で金属絶縁体転移を示す物質であると考えられてきた。ところが私たちが NMR によってスピン相関に関する実験を行ったところ、金属相において強い磁気相関が生じることがわかった。このため第一原理計算により 5d 遷移金属である Pt 原子の擬ポテンシャルにスピン軌道結合を入れた場合と入れない場合とで電子分散が大きく変化することを見出した。具体的にはスピン軌道相互作用は交差したバンド分散を分裂させ、half-filled のモット絶縁体の条件に近い状態となることがわかった。

### 4. まとめ

(Cation)[Pt(dmit)<sub>2</sub>]<sub>2</sub> はこれまで実験的にも理論的にもデータが不十分である。今年度の計算からスピン軌道結合の有無が電子状態に大きな変化をもたらすことが明らかとなった。

### 今後の計画・展望

今回計算した物質は 5d 遷移金属である Pt を含む。一般に Pt 元素は強いスピン軌道相互作用を有し、計算ではこの効果を露わに取り入れた。今後の物性研究の展開のために、スピン軌道相互作用を無視した場合との比較などの詳細な検討が必要である。

また、今回見出された物質の分光学的測定に資するさまざまな物理量の計算を併せて行い、関連する物性研究を展開していく。