

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

理研における所属研究室名:

開拓研究本部・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

$\alpha$ -(BETS)<sub>2</sub>I<sub>3</sub> は常圧で 2meV 程度の小さなギャップを持つ二次元ディラック電子系である(図 1)。この物質の電気伝導は 50 K 以上でほとんど温度依存性を示さず量子抵抗に対応した一層電気抵抗率である 5mΩcm に近い値を持つ。30 K 以下で半導体的な温度依存性になるもののこの変化はクロスオーバー的で、 $\alpha$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub> の低圧相で観測された電荷秩序相転移のふるまいとは大きく異なる。このため、バンド計算で計算された 2 meV のバンドギャップの起源は対称性の低下を伴うような電荷秩序に由来するというよりむしろスピン軌道結合など他の効果によるものと考えるのが適当である。

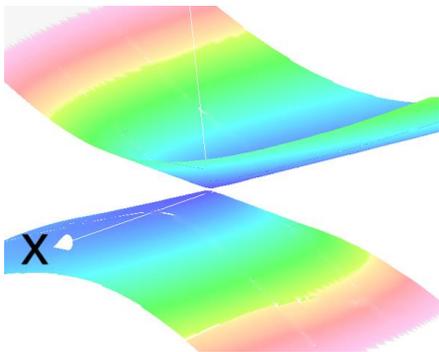


図 1:  $\alpha$ -(BETS)<sub>2</sub>I<sub>3</sub> のバンド構造  
(replot from Kitou et al. PRB103.035135)

### 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 を使い、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係をえて、NMR による実験結果との比較を行った。

計算リソースとしては BWMPD を用いた。

### 3. 結果

微視的電子状態を実験的に知るために <sup>13</sup>C 核を用いた NMR を行なっている。その解析のためにそれぞれの原子の 2p 軌道から HOMO バンドへの寄与電子密度を知る必要がある。バンド計算による部分状態密度の計算を行い各 <sup>13</sup>C 核と電子との超微細結合の大小を見積もることができた。

### 4. まとめ

ディラック電子系ではバンド間磁場効果による大きな軌道反磁性が期待され、これは三次元系だけでなく二次元系に対しても理論的に予測されている。しかしながら、ビスマスを始めとする三次元ディラック電子系と異なりこれまで二次元ディラック電子系の軌道反磁性を直接観測したという事例はなかった。われわれは、常圧ディラック電子系物質を見出したことを利用し磁化率の異方性を精密に測定することによって、二次元ディラック電子系  $\alpha$ -(BETS)<sub>2</sub>I<sub>3</sub> の軌道反磁性を観測することに初めて成功した。

### 5. 今後の計画・展望

SQUID 磁束系を用いた磁化測定から軌道反磁性の観測に成功したが NMR を用いた微視的測定を詳細に行いたい。このために計算機によって得られた超微細結合定数を用いた詳細な解析を行う予定である。

2020年度 利用研究成果リスト

【雑誌に受理された論文】

藤山茂樹、加藤礼三「量子スピン液体相近傍での磁気モーメントの分子内分裂」日本物理学会誌 **75**, 433 (2020)