

プロジェクト名(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・岩崎中間子科学研究室

## 1. 本プロジェクトの研究の背景、目的、関係するプロジェクトとの関係

分子性導体は 20 程度の原子により構成される分子の自己組織的結晶化によりさまざまな電子物性を示す。固体物理学全体の中でも分子性導体は重要な位置を占めているが、ユニットセル中に多数の原子が存在する有機導体の電子状態の記述には長い歴史がある。古くは分子間の結合性分子軌道と反結合性分子軌道から固体結晶全体を議論する拡張ヒュッケル法の有効性が議論されてきたが、近年では第一原理計算を用いた電子分散関係を比較的容易に行えるようになったことから、実験研究との積極的な連携により第一原理計算が実験を駆動する、ということもしばしば行われる。

今年度計算をおこなった  $\alpha$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub> は電荷秩序に伴う金属-絶縁体転移を示す有機導体であり、さらに圧力下ではディラック電子状態が実現することから、精力的に研究が行なわれている。電荷秩序状態は赤外・ラマン分光法などの電荷に敏感な手法を用いて議論されてきた。一方、分子性導体研究で有力な研究手法である核磁気共鳴(NMR)は、スピンに敏感な測定手法であり、電荷自由度が物性に支配的な本物質の電子状態を調べる上では、NMR の一種である核四重極共鳴(NQR)の観測が有効であると期待される。一方、NQR は NMR と異なり実験信号の観測周波数が自明でないため、何らかの方法で原子核まわりの電場勾配の情報を得る必要がある。

## 2. 具体的な利用内容、計算方法

結晶構造データを GIPAW(Gauge Including Projector Augmented Waves) 法に入力することにより電場勾配の値を得た。

## 3. 結果

電場勾配は  $V/m^2$  を単位としているがこれは核四重極モーメントと結合により周波数(=エネルギー)を単位とする NQR 信号の位置を与える。今年度あつかった  $\alpha$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>I<sub>3</sub> にはヨウ素原子が 3 つ並んだ I<sub>3</sub> アニオンが存在するが、第一原理計算の結果から 170MHz 前後に 2 種類のヨウ素原子核の NQR 信号が観測され得ることが示唆された。これは I<sub>3</sub> アニオンのうち両端のヨウ素原子核の信号であるとアサインされる。実際に NQR 信号を探索したところ計算の予言とほぼ同じ周波数での信号観測を行うことができた。

## 4. まとめ

固体中電子の電荷自由度、とくに電荷秩序に関する情報を得るために核四重極共鳴(NQR)は有効な実験手法である。これまで NQR は観測信号の観測周波数が非自明であるために実験的に強い制約があった。第一原理計算による電場勾配の評価は孤立した分子での経験はあるものの固体結晶においてはまだ少ないが、今年度の研究は計算と実験の良好な一致を示し、今後の新たな物質に対しても有効であることが期待できる。

## 5. 今後の計画・展望

今年度の研究を他の物質に展開していくことは容易であると考えられ今後も活用したい。