

プロジェクト名(タイトル):

分子性結晶の第一原理計算

利用者氏名:

○妹尾 仁嗣(1,2)、中 惇(1)

理研における所属研究室名:

(1) 開拓研究本部 古崎物性理論研究室

(2) 創発物性科学研究センター量子物性理論研究チーム

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

分子性結晶はその多様な機能性により、化学および物理分野において重要な位置を占め、理化学研究所においても活発に研究がされている。これらの電子状態解析において近年、第一原理計算から定量的な有効モデルを構築し、その上でモデル解析を行うフローが適用され、機能物性現象の解明に役立ってきた。分子性結晶は単位格子中に多くの原子を含むことがしばしばあり、その第一原理計算にはメモリ・速度の両面においてスーパーコンピュータが必要となる。本プロジェクトでは典型的な分子性結晶である κ 型 BEDT-TTF 物質群に対して、構造最適化も含めた計算を行い、特異な圧力誘起磁化現象の解析を目指す。

2. 具体的な利用内容、計算方法

第一原理計算用パッケージ Quantum Espresso を各アカウントのディレクトリ上でインストールし使用する。バンド計算を元に、機能発現を支配する低エネルギー有効モデルを導出し、その数値データを元にモデル解析を行う。

3. 結果

まず、単一分子からなる電気伝導体物質群、単一成分分子性導体[M(tmtd)]₂ (M=Ni, Pd, Pt, Cu, Au)等に対する有効強束縛モデルを、第一原理計算から導出した最局在ワニエ関数を元に構築した。分子内自由度「フラグメント分子軌道」を仮定した以前の研究におけるモデル化に比べ、より定量性の高いパラメータデータを得ることができた。これらを元に物質依存性を調べ系統的な電子構造変化を有効モデルを用いることで理解できた。

次に、構成分子が特徴的な配列を持つ κ 型分子性導体の反強磁性秩序状態において、応力印加によって強磁性

磁化が生じるピエゾ磁気効果が発現することを、第一原理計算を用いた構造最適化とこれらから導出されたハバードモデルに基づくモデル解析により示した。これは応力印加によって生じる、ユニットセル内の2種類の分子ダイマー間の交換相互作用の差と温度効果によるスピン揺らぎに起因し、古くから知られる相対論的なスピン軌道結合に依るものと異なる新現象を予言することができた

4. まとめ

分子性結晶に対する第一原理計算による有効モデル導出に成功し、新機能の予言に繋げることができた。第一原理計算から出発しているため従来の方法より信頼性の高い理論体系を構築できることを示した。

5. 今後の計画・展望

単一成分分子性導体に対して、より広範な物質群への適用やスピン軌道相互作用を含めたモデル化へと拡張を行いたい。またスピン液体物質 Pd(dmit)₂ 塩においても以前の研究にて分子内自由度が示唆されているため、本手法を適用したい。 κ 型分子性導体においてはスピン軌道相互作用を考慮し、従来型のピエゾ磁気効果も含めた包括的な理解を得たい。

2023 年度 利用研究成果リスト

【口頭発表】

1. 妹尾仁嗣、中惇、圓谷貴夫、是常隆、第一原理計算による単一成分分子性導体の有効モデル導出:フラグメント分子軌道とスピン軌道結合、日本物理学会第 78 回年次大会、東北大学、2023 年 9 月 18 日
2. 中惇、求幸年、宮崎剛、妹尾仁嗣、 κ 型有機導体におけるピエゾ磁気効果、日本物理学会第 78 回年次大会、東北大学)、2023 年 9 月 18 日