

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:

開拓研究所 上野核分光研究室

1. 本課題の研究の背景、目的、関係する課題との関係

分子性導体(Cation)[Pd(dmit)₂]₂ は、分子配列に由来する強い電子相関と幾何学的フラストレーションを併せ持ち、量子スピン液体や反強磁性相など多様な基底状態を示す物質群として知られている。これらの物性は結晶構造に極めて敏感であり、わずかな格子定数や分子配向の違いが電子状態や交換相互作用を大きく変化させる。そのため、実験構造を基準とした精密な第一原理計算による構造評価と電子状態解析が不可欠である。

本年度は、大規模計算資源(富岳)で実施するフォノンおよび熱輸送解析に先立ち、HBW2 クラスタを用いて構造緩和条件の検証、ワニエ関数の構築、および有効モデルパラメータの評価を行うことを目的とした。

2. 具体的な利用内容、計算方法

対象物質(Cation)[Pd(dmit)₂]₂ について、Quantum ESPRESSO を用いた構造緩和計算を実施し、ファンデアワールス相互作用(vdW 補正)を取り入れた交換相関汎関数の選択が結晶構造に与える影響を検証した。分子性結晶では弱い分子間相互作用の取り扱いが格子定数や分子間距離を左右し、フォノン分散・格子比熱・フォノン熱伝導の第一原理計算結果に直接反映され得るため、本年度は構造最適化条件の妥当性評価に重点を置いた。

これらの検証計算は複数条件の比較を伴う反復作業であるため、HBW2 を用いて計算条件探索とデータ生成を行い、大規模計算資源で実施するフォノン計算へ接続可能な入力条件の整備を進めた。

3. 結果

構造緩和計算の結果、vdW 補正の取り扱いによって格子定数および分子間距離が系統的に変化すること

を再確認した。分子性結晶ではこの差異がフォノン分散・格子比熱・フォノン熱伝導の計算結果に影響し得るため、低温 X 線構造解析の結果との整合性を基準として、以降のフォノン計算に適した構造最適化条件を選定するための基盤データを得た。

4. まとめ

HBW2 を利用して、分子性物質に対する第一原理計算の前処理および条件検証として、vdW 補正を含む構造緩和条件の比較・選定を実施した。これにより、フォノン分散・格子比熱・フォノン熱伝導の評価へ接続するための構造データおよび入力条件の基盤を整備した。

5. 今後の計画・展望

本クラスタで確立した構造評価および電子状態解析の手順を基に、フォノン計算や熱輸送解析との連携を進め、分子性量子スピン液体における格子自由度と電子相関の関係を総合的に明らかにする予定である。また、類似の分子性固体への展開により、大きなユニットセルを持つ物質群の物性評価に対する計算科学的アプローチの汎用化を図る。

6. 利用がなかった場合の理由

2025 年度 利用研究成果リスト

【雑誌に受理された論文】

【会議の予稿集】

【口頭発表】

1. 「分子性量子スピン液体の熱伝導の第一原理計算」 藤山茂樹、上田康平、大塚雄一 日本物理学会 2026 年春の学会

【ポスター発表】

【その他(著書、プレスリリースなど)】