

学位申請論文公開講演会

日時：2024年1月23日(火) 10:00~

申請者：川村 泰喜 (Sc 研)

場所：A421 教室

題目：Theory of magnetism due to molecular orbital degree of freedom and electron correlation in organic conductors

(有機導体における分子軌道自由度と電子相関による磁性の理論)

主論文の要旨

磁気秩序とそれに関連する新奇な現象の研究は物性物理学の主要な課題の1つである。とりわけ有機導体は、元素・分子置換の自由度の高さや圧力に対する敏感さのため、多様な物理現象を観測するプラットフォームとなっている。

有機ディラックノーダルライン系と、非等価な二量体を有する有機導体において磁気秩序に関連すると考えられる新奇な物性が観測されているが、それらのメカニズムは解明されていない。そこで本研究では有機導体における電子相関による新奇な磁性の解明を目指し、理論研究を行った。具体的には、ディラックノーダルライン系 $[\text{Ni}(\text{dmdt})_2]$ の異常なスピンゆらぎ、および $(\text{EDO-TTF-I})_2\text{ClO}_4$ における新奇な磁気秩序の解明を行った。

単一成分子性導体 $[\text{Ni}(\text{dmdt})_2]$ はフェルミ面を持つディラックノーダルライン系である。本研究では第一原理計算に基づいて飛び移り積分やクーロン相互作用を評価し、低エネルギー有効モデルを構成した。 $[\text{Ni}(\text{dmdt})_2]$ の低エネルギー有効モデルは同一分子内に偏った分子軌道「フラグメント軌道」を基底に記述される。このモデルに乱雑位相近似を適用しスピン感受率を計算した結果、波動関数の性質とフェルミ面によってスピン揺らぎがフラグメント軌道に大きく依存することが見出された。特に、分子の両端に偏ったフラグメント軌道において非自明な分子内反強磁性揺らぎが低温で大きく発達することがわかった。さらに、NMRで観測されるナイトシフトと $1/T_1T$ の計算を行い、実験と矛盾しない結果を得た。

一方、 $(\text{EDO-TTF-I})_2\text{ClO}_4$ は低温で単位胞内に2つの非等価な二量体を有する電荷移動錯体である。本論文では、第一原理計算に基づく低エネルギー有効モデルを導出し、実空間平均場近似および変分モンテカルロ計算によって $(\text{EDO-TTF-I})_2\text{ClO}_4$ の基底状態を計算した。その結果、補償型フェリ磁性が基底状態の候補として得られた。これは二量体が単位胞内で逆向きに磁化する「ダイマー反強磁性秩序」の一種だが、二量体の非等価性のためエネルギーバンドがスピン分裂したフェリ磁性であり、基底状態では $3/4$ フィリングのために厳密に磁化がゼロになる「補償型フェリ磁性」と呼ばれる。特に、補償型フェリ磁性ハーフメタルはスピン流の生成に役立つと期待されている。

どちらの物質も反強磁性的な性質が現れ、さらに分子軌道の自由度が重要な役割を担っている一方はフラグメント軌道、もう一方は非等価な二量体の自由度である。本研究は、分子軌道の自由度と電子相関効果によって多様な磁気ゆらぎ、磁気秩序が現れることを示した。