

(TMTTF)₂X 電荷秩序状態に対する DFT 計算

産業技術総合研究所 ナノテクノロジー研究部門
高エネルギー加速器機構 物質構造科学研究所

下位幸弘¹
岩野 薫

光誘起相転移現象をはじめ興味深い光誘起現象を示す有機導体では、分子内ならびに分子間に多くの自由度が存在する。これまでの有機導体に対する光誘起相転移や電荷秩序状態の理論では、一つの分子を 1 サイトに置き換え、本質的な自由度を取り出したモデルハミルトニアンの手法が使われることが多かった。一方、第一原理計算などでは、現実の分子配列のもと、多くの自由度を考慮した理論計算が可能である。我々は、光誘起相転移現象の初期過程を理論的に解明することを最終的な目標として、クラスターベースの密度汎関数法 (DFT) を有機導体へ適用することに取り組んでいる [1,2]。このような手法は、モデルハミルトニアンと相補的な手法になりうると考えられる。

我々の用いた手法では、結晶構造から有限サイズのクラスターを切り出し、DFT を適用する。この際、周囲の分子ならびに対イオンの影響を点電荷として取り込む。点電荷をクラスター内の各原子の電荷と自己無撞着にすることで、結晶状態により近い状況下での計算を行う。これまでに、このような方法により、高速な光誘起相転移ならびに (0110) タイプの電荷秩序状態で注目される (EDO-TTF)₂PF₆ の電荷秩序の起源の解明や光学スペクトルの説明などについて研究を行ってきた [1,2]。

本発表では、このようなアプローチの展開として、典型的な擬 1 次元有機導体である TMTTF₂PF₆ の電荷秩序状態について報告する。TMTTF 分子が 1 次元鎖方向に 12 分子 (ダイマー 6 個) 配列したクラスターに対して計算した結果、電荷密度ならびにスピン密度がダイマー内でわずかに偏り、(0101) 型の弱い電荷秩序状態が得られた。また、ダイマー間では反強磁性的なスピン構造をとり、ダイマーモットのなスピン構造が電荷秩序と共存している。弱い電荷秩序は実験 [3,4] と定性的に一致している。

参考文献

- [1] K. Iwano and Y. Shimoi, Phys. Rev. B **77** (2008), 075120.
- [2] K. Iwano and Y. Shimoi, physica status solidi (c) **6** (2009), 120.
- [3] S. Ravy, et al., J. Phys. IV **114** (2004), 81.
- [4] T. Nakamura, K. Furukawa, T. Hara, J. Phys. Soc. Jpn. **76** (2007), 064715.

¹E-mail: y.shimoi@aist.go.jp