

研究種目：若手研究(B)  
研究期間：2007～2010  
課題番号：19750005  
研究課題名(和文) 磁性伝導体の全ての相互作用パラメータの分子軌道法による厳密計算と分子設計への適用  
研究課題名(英文) Theoretical studies on magnetic metals by accurate MO calculation for all magnetic parameters  
研究代表者 川上 貴資 (KAWAKAMI TAKASHI)  
大阪大学・大学院理学研究科・助教  
研究者番号：30321748

研究分野：化学

科研費の分科・細目：基礎化学・物理化学

キーワード：強相関電子系, 磁性, スピンエレクトロニクス, 超伝導材料・素子, 分子性固体

### 1. 研究計画の概要

本申請課題にて申請者が研究対象として解析する新奇物質系は、ドナー分子層の伝導性とカウンターイオン層の磁性がカップリングした各種の「磁性伝導体」の分子性結晶である。これらに関しては、既に小林(分子研)らにより超伝導性+反強磁性の性質を有する  $\kappa$ -BEDT-TTF<sub>2</sub>FeCl<sub>4</sub> が報告され非常に注目を集めた。しかしながら、超伝導性+強磁性である物質の探索は未だ発展途上であり、申請者も非常に興味を持っており是非とも理論的に予言をしたい。更に、これらの研究の成果として、実験科学者から種々の興味深い物質系が報告されている。本申請課題では種々の磁性伝導体の分子性結晶を包括的に取り扱うことができる理論的な方法論の開発と、各分子性結晶への適用を行う。その結果として、実験と相補的に理論からの分子設計を目指す

### 2. 研究の進捗状況

相互作用パラメータに関する研究を行い、特に  $J$ ,  $J'$  に着目した研究を進めているところである。従来より分子軌道法を用いて有効交換積分値( $J$ )を見積もることで、有機強磁性体や有機超伝導体の解析を進めてきた。しかし、これらの学際分野が深化するにつれて、ノンコリニアアスピンの取り扱いなど、次のステップの有効交換積分値の計算手法の開発が急務となってきた。そこで、拡張した有効交換積分値( $J'$ )を定義し、障害なくあらゆる

対象系にて計算可能とした。既に研究を行った系としては、例えばBEDT-TTF・BETS・TMTTF・TMTSFドナー分子を含む結晶が挙げられる。これらに関して、その磁性や伝導性の発現機構に関して理論計算を用いて解析した。その時のパラメータとしては、申請者が以前から行ってきた有効交換積分値( $J$ )のみならず、トランスファー積分( $t$ )やクーロン反発積分( $U_{\text{eff}}$ )に関しての計算も可能とするアルゴリズムを開発して、各系に関して詳細に算出した。これらの結晶の中で特にBETS結晶に関しては、(BETS)<sub>2</sub>FeCl<sub>4</sub>塩といった伝導性層と磁性層が有効に配置され、互いに相互作用している興味深い系も取り扱った。また、 $k$ -phaseや $l$ -phaseといった結晶系の異なりに起因する物性の差異に関しても、理論計算を用いて解析した。

### 3. 現在までの達成度

#### ②おおむね順調に進展している。

申請段階での予定していた理論計算に関して、遂行できている。また、これらの結果等から派生する研究に関しても成果が上がっており、その結果を論文誌や学会発表にて公開している。

### 4. 今後の研究の推進方策

引き続きに相互作用パラメータに関する研究を進める。更に、統計理論的なスピンスミュレーションを実行することで、各種のマクロな物理量を算出する。これにより、実験による磁化測定などの結果との比較を可能と

する。

RSC Publishing (2007)

5. 代表的な研究成果

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 32 件)

- ① T. Kawakami, R. Takeda, S. Nishihara, T. Saito, M. Shoji, S. Yamanaka, Y. Kitagawa, M. Okumura and K. Yamaguchi

Symmetry and Broken-Symmetry in Molecular Orbital Descriptions of Unstable Molecules III. The Nature of Chemical Bonds of Spin Frustrated Systems

J. Phys. Chem. A, 113 (2009) 15281-15297.

査読有

- ② T. Kawakami, H. Nitta, M. Takahata, M. Shoji, Y. Kitagawa, M. Nakano, M. Okumura, K. Yamaguchi

Quantum dynamic simulations for single molecular magnets using anisotropic spin models

Polyhedron, 28 (2009) 2092-2096. 査読有

- ③ T. Kawakami, M. Takenaka, Y. Nishimura, Y. Kitagawa, M. Okumura, Y. Yamaguchi, S. Takamizawa, W. Mori
- Theoretical studies of radical spin arrangements in the cavity of nanoporous complexes

Polyhedron, 26 (2007) 2367-2374. 査読有

[学会発表] (計 15 件)

- ① 川上貴資, 木下啓二, 北河康隆, 山口兆, 奥村光隆

磁性分子としての酸素分子の低次元細孔への吸蔵や分子表面への吸着現象の理論計算

日本化学会春季年会, 2010.3.26-29, 近畿大学

- ② 川上貴資, 武田亮, 庄司光男, 新田浩也, 北河康隆, 山口兆, 奥村光隆

分子軌道法による相互作用パラメータの第一原理計算と磁性体等への展開

触媒討論会, 2009.9.27-30, 宮崎大学

[図書] (計 1 件)

- ① T. Kawakami, M. Shoji, T. Taniguchi, Y. Nishimura, M. Takenaka, K. Kitagawa, S. Yamanaka, M. Okumura and K. Yamaguchi

Multifunctional Conducting Molecular Materials (執筆分担) p.101-104