

## 15aWH-6 強く二量化した系における電子相関の起源

理研・科学技術振興機構

田村雅史, 加藤礼三

The origin of on-site repulsion in a strongly dimerized system

RIKEN, JST-CREST

Masafumi Tamura, Reizo Kato

$\kappa$  型 ET 塩など二量体構造をもつ系の有効オンサイト斥力  $U_{\text{dimer}}$  については, Hubbard 模型の結果を  $t \ll U$  で近似した表式,  $U_{\text{dimer}} = 2t + (1/2)[U - (U^2 + 16t^2)^{1/2}] \approx 2t$  ( $U$  は単量体分子のオンサイト斥力,  $t$  は二量体内の分子間 transfer) に基づいてしばしば議論され, 二量化の強さ (ここでは  $t$ ) と有効斥力が比例していると見なされる. この線形化近似は  $t \approx 0.1 U$  程度まで有効だが, 二量化が強い  $t > U/2$  ( $[\text{Pd}(\text{dmit})_2]$  塩などの場合) では  $U_{\text{dimer}}$  が  $t$  の関数として飽和し, 二量化の強さと電子相関が一見無関係になるように見える. これは二量体内の分子間 Coulomb 斥力  $V$  を考慮していないことによるものである. 拡張 Hubbard 模型で  $V$  の効果を取り入れれば, 二量化の強さと  $U_{\text{dimer}}$  が広いパラメータ領域で相関している.

拡張 Hubbard 模型で有効斥力は, 次の式で与えられる.

$$U_{\text{dimer}} = 2t + V + (1/2)[u - (u^2 + 16t^2)^{1/2}], \quad (u = U - V).$$

$V$  も  $t$  も二量化に応じて変化するので, 二量化度を表す変数をはっきりさせる必要がある. 一般に二量化を特徴づける構造パラメータ  $x$  (例えば分子間距離) を使えば, 実験 ( $x$  の制御) に対応する  $U_{\text{dimer}}$  の二量化依存性は,

$$dU_{\text{dimer}}/dx = (\partial U_{\text{dimer}}/\partial t)(dt/dx) + (\partial U_{\text{dimer}}/\partial V)(dV/dx),$$

と書ける. 特に  $t$  で二量化度をはかるとすると,  $x = t$  と考えて,

$$dU_{\text{dimer}}/dt = \partial U_{\text{dimer}}/\partial t + (\partial U_{\text{dimer}}/\partial V)(dV/dt),$$

が  $U_{\text{dimer}}$  の二量化依存性を表す.  $t > U$  で  $\partial U_{\text{dimer}}/\partial t \approx 0$  となっても, 第2項の寄与で  $U_{\text{dimer}}$  は二量化に応じて増加する.

この方法で  $U_{\text{dimer}}$  と二量化の関係を調べると,  $t/U$  の大小にあまり関係なく,  $U_{\text{dimer}}$  は二量化が強くなると増加することがわかる. その原因は, 二量体が狭くなると  $V$  が増えることによる  $U_{\text{dimer}}$  の増加である.  $V = 0$  近傍を除いて斥力の主な起源は  $V$  である. 同じ結論が,  $[\text{Pd}(\text{dmit})_2]$  塩のような HOMO-LUMO 二準位交差系でも導かれる. 二量体を1分子と見なしたときは二量体内の  $V$  が二量体全体の  $U$  のように見えるというごく自然な意味をもつ. 以上は, 実験的観点から構造と金属-絶縁体転移との対応関係を論じる際に注意を要する点であるが, 同時に有効なものといえる.