

分子性導体におけるスピン軌道相互作用の効果

藤山茂樹、加藤礼三 (理研)

固体中の電子運動とそのスピン自由度の相対論的結合に起因するスピン軌道相互作用は、近年トポロジカル電子相やスピン輸送などの興味深い現象の起源として注目されている。一方、炭素と水素などの軽い元素を基本構成要素とする分子性導体においてはこれまで、スピン軌道相互作用は大きなエネルギーを持たず、物質の性質を決定づける主役とはなりえない、と考えられてきた。

5d 遷移金属が 2 つの dmit 配位に挟まれた金属錯塩(Cation)[Pt(dmit)₂]₂ は電気抵抗と磁化率測定から $T = 160 \sim 220\text{K}$ で金属絶縁体転移を示すことが知られる。これは構造の低対称化に伴い half-filled の電子状態をとっていた [Pt(dmit)₂]₂ 二量体が +2 価と 0 価の二量体に電荷分離するバンド絶縁体であると解されている。転移温度以下の磁化率はほとんどゼロとなり、この描像と矛盾がない。一方、転移温度以上の磁化率は温度降下にもない有意な漸減が観測され、典型的な金属状態とはいえない。われわれはこの物質群のうち、転移温度が $T \sim 220\text{K}$ となる Me₄P[Pt(dmit)₂]₂ をとりあげ ¹³C-NMR 測定を行った。核スピン格子緩和率 ($1/T_1$) は 210K 以下で大きなエネルギーギャップを感じながら抑制され、バンド絶縁体となっていることを示す。一方、220K 以上では $1/T_1$ はほとんど温度に依存せず、金属というよりむしろ磁性絶縁体と考える方が自然である。これは、電気抵抗測定から示唆される金属的電子状態と矛盾し、この物質の転移温度以上のバルク電子状態がスピン軌道相互作用と電子間クーロン反発の協奏によって生じた新奇なものであることを示唆する。第一原理計算によるこの物質のバンド構造は Pt サイトにはたらくスピン軌道相互作用の有無によって大きく変化することがわかっており、上述の議論を支持する。