

有機三角格子スピン系  $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$  における量子スピン液体

Quantum spin liquid in the organic triangular-lattice spin system  
 $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$

伊藤哲明

京都大学大学院 人間・環境学研究科

Tetsuaki Ito

Graduate School of Human and Environmental Studies, Kyoto University,

The family of layered organic salts  $\text{X}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$  are Mott insulators and form scalene-triangular spin-1/2 systems. Among them,  $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$  has a nearly regular-triangular lattice. We have investigated the spin state of this salt by  $^{13}\text{C}$ -NMR and static susceptibility measurements. The temperature dependence of the susceptibility is described as that of a regular-triangular antiferromagnetic spin-1/2 system with an exchange interaction  $J=220\text{--}250$  K. The  $^{13}\text{C}$ -NMR measurements reveal that the ground state of this system is a spin liquid state, which has gapless excitation at least down to 1.37 K.

## 1. はじめに

古典力学では、相互作用する多体粒子系は絶対零度では必ず固体化（すなわち秩序化）をする。これに対し、量子力学の基本原則である不確定性原理は、量子揺らぎを生じさせ、ときに絶対零度においても秩序化しない量子液体状態を実現させることがある。液体ヘリウムや金属中の伝導電子は、これら量子液体状態の良く知られた例であり、過去 100 年の間長らく研究されてきた。

一方で、スピン系に対しても、このような不確定性原理に基づく量子液体状態が実現する可能性があるのではないか？という問いかけがあり、これは物性物理における長い間の大問題のひとつであった。近年有機系（正確には有機電荷移動錯体系）で、このような量子スピン液体が実現していると考えられる物質が見つかってきている。本稿では筆者が手がけているスピン液体物質  $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$  について紹介し、このスピン液体の物理を解説する。

## 2. 量子スピン液体

ここでは量子スピン液体の（厳密ではないが）直感的な導入を行おう。

スピン間の相互作用の最も基本的な形はハイゼンベルグ型相互作用  $\sum_{ij} J_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j$  である。反強磁性相互作用 ( $J > 0$ ) が働く系において、基底状態で何が起こるかを考えてみよう。（この章では三角格子などのフラストレーション格子はまだ考えず、通常の立方格子や正方格子などを念頭におく。）

まず明らかに、古典力学の範疇では、スピンの反対向きに整列した反強磁性秩序状態が最低エネルギー状態となる。しかしながら、この結論は、量子力学的なスピンに対しては、スピン角運動量の  $x$ ,  $y$ ,  $z$  成分間に働く不確定性のため、必ずしも自明ではない。以下、 $S=1/2$  スピンを考える。

ハイゼンベルグハミルトニアンは次のように変形できる。

$$H = \sum_{ij} J_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j = \sum_{ij} J_{ij} \{S_i^z S_j^z + 1/2(S_i^+ S_j^- + S_i^- S_j^+)\}$$

3式目前半の  $S_i^z S_j^z$  項 (イジング項) は, 古典力学と同様,  $|\uparrow\downarrow\uparrow\downarrow\cdots\rangle$  のように  $\uparrow$  スピンと  $\downarrow$  スピンが交互に局在する古典的反強磁性秩序状態を最低エネルギーとする. それに対し, 後半の  $S_i^+ S_j^- + S_i^- S_j^+$  項 (スピン反転項) は, この反強磁性秩序状態に対し演算すると,  $\uparrow$  スピンと  $\downarrow$ スピンの位置を交換し飛び移らせる項となっている. 従ってこの項は,  $\uparrow$  スピンや  $\downarrow$  スピンが, 1 つおきに局在するのではなく, 遍歴する状態を作り出す効果を持つことになる. もしイジング項に対しこのスピン反転項が支配的になるようなことがおこれば, 古典的反強磁性秩序ではなく,  $\uparrow$  スピンや  $\downarrow$  スピンが空間的に遍歴する量子液体状態が実現するだろう, というのが量子スピン液体の基本的な考え方である.

### 3. 量子スピン液体の実現とフラストレーション

さて, 上記のような導入をすると, 量子スピン液体はかなり普遍的に見出されることのように一見思われるかもしれない. しかしながら実際には, このような量子ゆらぎ (スピン反転項) の効果は  $1/2$  スピンに対しても小さく, 通常は古典的反強磁性秩序が基底状態で実現すると考えられてきている. 実際 3 次元の立方格子 (あるいはそれ以上の次元の超立方格子) では, 基底状態における反強磁性秩序の出現は厳密に証明されている[1,2]. 一般に次元を小さくすると量子ゆらぎの効果は強くなるが, 2 次元正方格子では厳密な証明はないものの, 基底状態では磁気秩序が実現することはほぼ確実視されている[3]. 1 次元鎖格子では数学的には量子液体が実現し得るが[4], このスピン液体状態は非常に不安定で, 僅かなイジング異方性や鎖間相互作用で基底状態は古典的反強磁性秩序に変わってしまう.

(又そもそも, たとえ古典秩序化を免れたとしても, この 1 次元量子液体は spin-Peierls 不安定性を持ち, 安定には存在できず, 非磁性状態に移行してしまう.)

このような事情で, 通常の格子では量子スピン液体の実現は不可能であり, 古典的反強磁性秩序が成立する. 従って量子スピン液体の実現のためには, 古典的磁気秩序をエネルギー的に不安定にするフラストレーション効果の助けを借りなくてはならず, 幾何学的フラストレーションを持つ格子が必須となるのである. 幾何学的フラストレーションについては本誌第 14 号で山下氏が詳しく解説されているので[5], そちらを参照されたい.

### 4. 有機電荷移動錯体 $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$

前述のように, 量子スピン液体の実現には, フラストレート格子量子スピン系物質を探索する必要がある. このような目的で無機化合物を中心に長い間フラストレーションスピン系の研究が行われてきた. しかしながら, 無機化合物のフラストレーション磁性体の種類は限られており, 又実際に作成できたフラストレート磁性体も, 低温でむしろスピングラス的な振る舞いが現れるなど, 量子スピン液体はなかなか実現してこなかった.

このような状況下で, 最近有機電荷移動錯体において良質なフラストレーション三角格子  $1/2$  スピン系が実現することが認識されつつあり, その中で  $\kappa\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$ ,  $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$  と相次いでスピン液体と思われる物質が発見されている[6,7]. ここではそのうちの 1 つ  $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$  について解説しよう.

$\text{Pd}(\text{dmit})_2$  は図 1 (a) に示すような有機分子である. この分子そのものは多くの有機分子がそうであるように, 分子軌道は閉殻となっており, この分子単体で結晶を形成してもただの非磁性バンド絶縁体となるだけである. しかしながら, この分子は 1 価の閉殻非磁性正イオン  $X^+$  と  $X[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$  という 1:2 の組成の二次元積層結晶を形成することが知られている. この結晶中では, 図 1 (b),(c) に示すと

り、Pd(dmit)<sub>2</sub>分子は強く二量体化した[Pd(dmit)<sub>2</sub>]<sub>2</sub>というユニットを形成しており、この[Pd(dmit)<sub>2</sub>]<sub>2</sub>ユニットの分子軌道に、X<sup>+</sup>から供給された電子が1つ入っている。1ユニットで1つ電子を持つため、バンドは half-filled となるが、X[Pd(dmit)<sub>2</sub>]<sub>2</sub>では電子間のクーロン反発が大きく、常圧では Mott 絶縁体となっている。即ち、二量体[Pd(dmit)<sub>2</sub>]<sub>2</sub>上に電子が1つ局在している 1/2 スピン系となるわけである。この二量体[Pd(dmit)<sub>2</sub>]<sub>2</sub>分子軌道間には三角形上に移動積分が働いており、図 1 (d)のような二次元三角格子 1/2 スピン系となる。ただし三辺の相互作用の値は全て異なる不等辺三角形である。

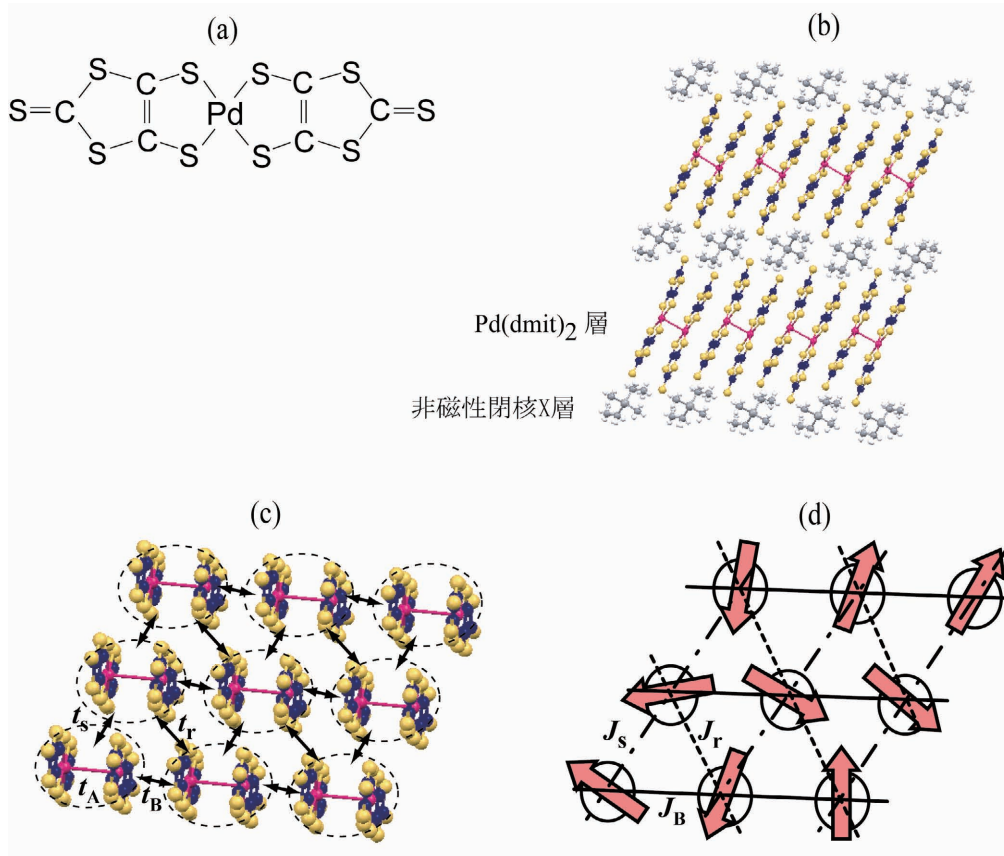


図 1 (a) Pd(dmit)<sub>2</sub>分子の構造式. (b) 層状構造を持つ X[Pd(dmit)<sub>2</sub>]<sub>2</sub>結晶を横から見た図. Pd(dmit)<sub>2</sub>分子は 3.1Å 程度の短い Pd···Pd 結合長 (図中ピンクの線) を持つ二量体[Pd(dmit)<sub>2</sub>]<sub>2</sub>ユニットを形成している. (c) Pd(dmit)<sub>2</sub>層を上から見た図. 二量体内の移動積分  $t_A$  は二量体間の移動積分  $t_s, t_r, t_B$  に比べはるかに大きく、二量体を1つのユニットと見ることが正当化される. (d) Pd(dmit)<sub>2</sub>層のスピン系の概念図. 二量体上に1つの 1/2 スピンがいて、スピン間には  $t_s, t_r, t_B$  を反映した交換相互作用  $J_s, J_t, J_B$  が働く.

有機電荷移動錯体の共通の特徴であるが、この物質も1価の閉殻正イオン X<sup>+</sup>を変化させることで、格子長を制御し、結果として三辺の相互作用の大きさを制御することが出来る。表 1 に示すとおり多くの物質群が知られているが、三角形が正三角系から遠くフラストレーション効果が弱い物質群では、通常の磁性体同様に古典的反強磁性秩序を示す[8]。ただし、格子を正三角形に近づけフラストレーション効果を強くしていくと、この古典的反強磁性秩序形成温度は抑制されていく傾向が確認できる。

眼目は最も正三角格子に近い  $X=\text{EtMe}_3\text{Sb}$  塩である。以下に述べるとおり、この系では反強磁性秩序は生じず量子液体が実現するのである。


閉殻カチオンX	$t_A$ (meV)	$t_B$ (meV)	$t_s$ (meV)	$t_r$ (meV)	Frustration	$T_N$ (K)
$\text{Me}_4\text{P}$	439.5	36.4	33.7	21.5	weak	42
$\text{Me}_4\text{As}$	443.5	34.0	32.6	22.8		35
$\text{Et}_2\text{Me}_2\text{P}$	445.8	29.4	29.3	24.3		17
$\text{Me}_4\text{Sb}$	450.1	30.0	28.4	25.4		16
$\text{Et}_2\text{Me}_2\text{As}$	446.6	29.6	29.3	24.4		16
<b><math>\text{EtMe}_3\text{Sb}</math></b>	<b>453.5</b>	<b>28.3</b>	<b>27.7</b>	<b>25.8</b>	<b>strong</b>	<b>?</b>

表1  $X[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$  系の移動積分値と古典的反強磁性転移温度( $T_N$ ). [7,8]

## 5. 静磁化率[7]

まず、 $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$  の 5K-300K におけるスピン磁化率の温度依存性を図2に示す。

磁化率は典型的なフラストレート磁性体の振る舞い、即ち温度を下げていくと反強磁性相関の成長のため Curie-Weiss 則から磁化率が抑制されていき、ピークをとった後減少していく、という振る舞いが観測される。5K までの温度域では、磁化率の温度依存性にはキंकはなく、又低温極限の値は有限にとどまるようであり、反強磁性秩序の形成もスピングャップの兆候も見られない。

図中の実線は 1/2 スピン正三角格子ハイゼンベルグモデルの高温展開の計算結果である。  $J=220\text{K}$  ~  $250\text{K}$  の計算値に比較的良くあっており、この程度の相互作用を持つ系であることがわかる。ただし、完全にこの計算値と実験値が一致しているわけではない。このことは、 $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$  のスピンハミルトニアンに正三角格子ハイゼンベルグからのいくぶんかの逸脱があることを物語っている。

この原因として1つには、格子が完全に正三角格子でなく、三辺が僅かに異なる不等辺三角形であることが挙げられる。またもう1つは、スピン間の高次相互作用の存在である。この物質は金属-絶縁体転移の近傍に位置しており、移動積分が電子相関のエネルギースケールに比べて極端に小さいわけではない。従って移動積分の高次摂動が無視できず、多体交換相互作用や離れたスピン間のハイゼン

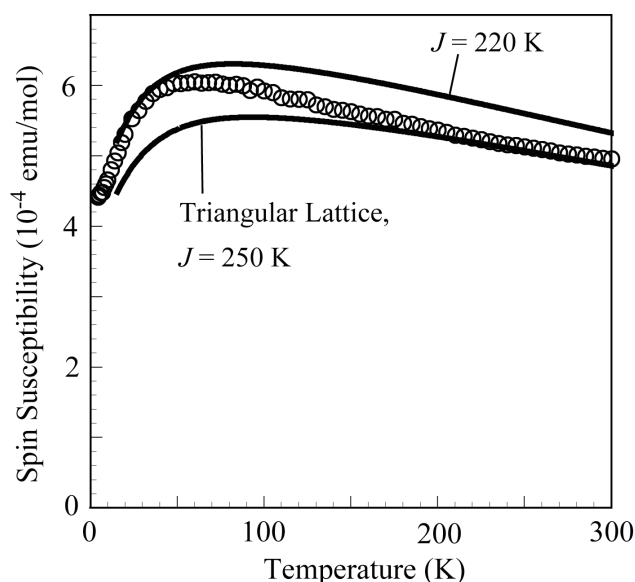


図2  $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$  の帯磁率。

ベルグ相互作用などが効いてくる可能性がある。

実のところ理論的な計算からは、正三角格子ハイゼンベルグモデルではスピンは 120 度構造を持った古典的磁気秩序をすることが確実視されており[9-12], 上記の正三角格子ハイゼンベルグモデルからの逸脱がスピン液体の実現に対し重要な役割を果たしているのかもしれない。

## 6. $^{13}\text{C}$ -NMR[7]

上述の通り、磁化率からは 5K まで磁気秩序・スピングャップの兆候はない。ただし、磁化率にはわずかな不純物キュリーの寄与がありえるため（典型的には 0.1%程度）、磁化率のみからこれらに関して断言するのは難しい。これらの最終判断のためには、ミクロスコピックに内部磁場を判断できる NMR が強力な手段となる。特に有機物質は微小な単結晶しか作成できないため、中性子実験が困難であり NMR が最有力な実験手法となる。

NMR の原理は以下の通りである。核スピンを持つ原子核が磁場の元にさらされると Zeeman 分裂を起こし、この分裂に対応するエネルギーの周波数の電磁場を照射すると共鳴吸収が起こる。磁場は外部からかける訳であるが、電子スピンの秩序化があるとこの電子スピンが作る内部磁場も加わり、共鳴周波数の分布が生じるわけである。これにより磁気秩序の有無が一目瞭然にわかる。

この説明からわかるように、NMR 実験を行うにあたっては、核スピンを持つ原子核種がプローブとして必須である。このため、図 3 の左上分子式のように Pd(dmit)<sub>2</sub> 分子の末端の C 原子を  $^{13}\text{C}$  に置換した試料を作製し、NMR 実験を行った。このサイトの超微細結合定数は 1 MHz/ $\mu\text{B}$  程度であり[7], もし磁気秩序・スピングラス化が生じれば、

1 MHz オーダーまでのスペクトル線幅の急激な増大が生じるはずである。

図 3 は微小単結晶の集合体に対して 7.65T のもとで測定した NMR スペクトルである。低温に向けての僅かな線幅の増大はあるものの（これは次章で詳しく議論する）、磁気秩序に特徴的な急激な線幅の増大は観測されない。線幅も、すそ野まで含めてもせいぜい  $\pm 50\text{kHz}$  程度で超微細結合定数に比べて非常に小さく、明らかに磁気秩序・スピングラス化がないことが断言できる。測定されたスペクトルの最低到達温度は 19.4mK であり、この温度はスピンハミルトニアンエネルギースケール ( $J = 220 \sim 250\text{K}$ ) の 1 万分の 1 以下である。従ってこの温度域では、熱揺らぎの影響は十分に排除され基底状態に到達できているはずであり、量子揺らぎにより古典的磁気秩序が抑制されていると結論できる。

以上により、量子力学的スピン状態が実現していることが明確になった。次に問題

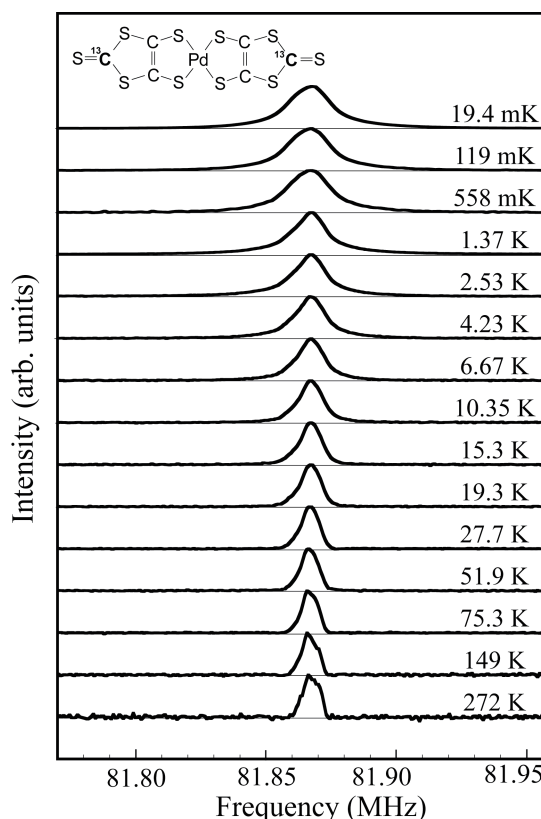


図 3 選択的  $^{13}\text{C}$  置換を行った  $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$  の  $^{13}\text{C}$ -NMR スペクトル。

になるのは、低エネルギースピンの励起にギャップが開いているか、ギャップレスであるかである。

NMR のスピン-格子緩和率 ( $T_1^{-1}$ ) は、核スピン系のエネルギーが熱浴 (今の場合電子スピン系) に緩和する早さを表している。もし、電子スピン系の励起にギャップが開いていれば、核スピンからエネルギーを受け取れるものはギャップを超えて励起されているスピン素励起のみである。ギャップが開いている場合、この素励起数は温度の降下に対し急激に減少していくので、 $T_1^{-1}$  も温度に対して急激に減少していくことになる。

図4は $^4\text{He}$ クライオスタットで測定した1.37Kまでの $T_1^{-1}$ の温度依存性である。まず見て取れるのは、 $T_1^{-1}$ は温度に対して単調に変化しているということである。磁気秩序が生じる際には臨界発散と呼ばれる $T_1^{-1}$ の急激な増大が起こるが、このような振る舞いは全く見られない。スペクトルで議論したことの再確認であるが、やはり古典的磁気秩序は生じていないと結論できる。眼目のギャップ構造に関してであるが、 $T_1^{-1}$ は5K以下ではほぼ一定値に落ち着き、1.37Kまで、 $T_1^{-1}$ が急激に減少するような兆候は全く観測されない。従って、少なくとも1.37Kまでの温度域ではスピン励起にギャップは開いていないことがわかる。古典的磁気秩序がないことも併せて考え合わせ、ギャップレス量子スピン液体状態が実現していると結論付けられる。

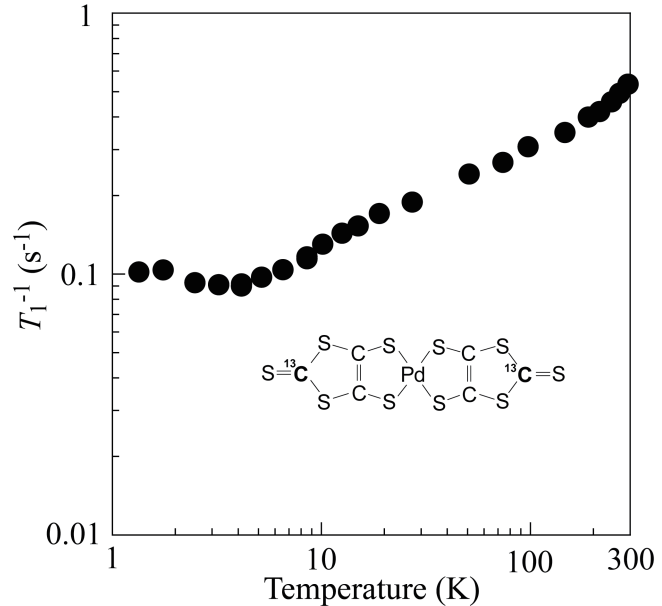


図4 EtMe<sub>3</sub>Sb[Pd(dmit)<sub>2</sub>]<sub>2</sub> の  $^{13}\text{C}$ -NMR スピン-格子緩和率

## 7. 量子スピン液体状態における欠陥効果の考察

——なぜ量子スピン液体が長い間見つからなかったのか？——

前章までで、EtMe<sub>3</sub>Sb[Pd(dmit)<sub>2</sub>]<sub>2</sub> においてギャップレス量子液体が実現していることを示した。ただし、少々気になることとして図3で見られるとおり、低温で僅かに線幅の増大が観測されているという点がある。NMR の線幅の増大には、内部磁場が静的に不均一になっている場合と、均一ではあるが内部磁場の揺らぎが非常に遅くなっている場合の二通りの可能性があり得る。両者はスピン-スピン緩和率  $T_2^{-1}$  の振る舞いにより識別できる。詳細は省略するが、EtMe<sub>3</sub>Sb[Pd(dmit)<sub>2</sub>]<sub>2</sub> の  $T_2^{-1}$  は 1ms 程度で温度に依存せず、図3の低温における線幅の増大は静的な不均一内部磁場によるものと結論付けられる。もちろんこの線幅の増大は、先に述べたとおりスピンの秩序化・グラス化で説明できるようなスケールのものではない。面白いことに、全く同様の不均一内部磁場の出現が、もう1つのスピン液体物質κ-(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>CN<sub>3</sub> でも報告されている[13]。このようなわずかな不均一内部磁場がなぜ生じるのであろうか？ まず最初に疑うことは、試料の質がかなり悪いのではないか、ということであろう。しかしながら、一般に有機電荷移動錯体は、ストイキオメトリーが非常に良く、欠陥の少ない試料ができることが知られている。(このことは例えば、金属的な有機電荷移動錯体においては

de Haas 振動が比較的容易に観測できることなどでもわかる。) 質の良い試料ができるはずの有機電荷移動錯体系で見つかった量子スピン液体物質において、いずれも不均一内部磁場が生じていることは、スピン液体の本質を反映していると捉えるのが自然であろう。この点について次に議論しよう。

一般に局所的な欠陥サイトが生じると、そのサイト周りのスピン相関長程度の領域に、staggered magnetization が出現することが良く知られている (図 5)。基底状態においてはこの相関長は  $J/\Delta$  格子程度になる ( $J$ : 交換相互作用,  $\Delta$ : スピンギャップ)。ギャップレスの場合、相関長は発散して、擬長距離相関 (冪減衰を持つ相関関数) になるはずである。

今回の量子スピン液体では、ギャップレスである (あるいはギャップはあったとしても非常に小さい) ため、スピン相関はかなりの長距離に渡ることとなる。従って、欠陥が非常に僅かに含まれている場合でも、図 6 (a) のように、その周りの広い領域に staggered magnetization が誘起されてしまうはずである。これが  $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$ ,  $\kappa\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{Cu}_2\text{CN}_3$  の両スピン液体状態で観測されている不均一内部磁場の正体であると筆者は推測している。

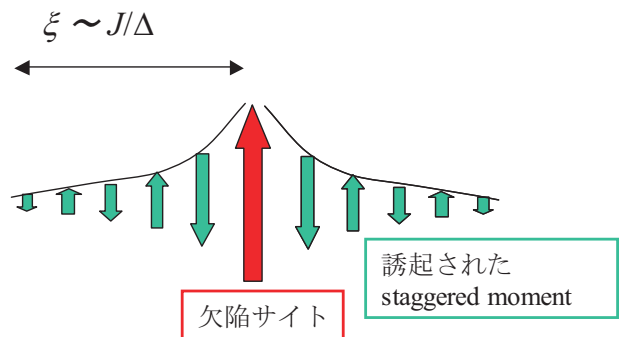


図 5 欠陥サイトの周りに誘起された staggered moment の概念図。格子長を単位として測った相関長  $\xi$  は、基底状態において  $J/\Delta$  程度である。

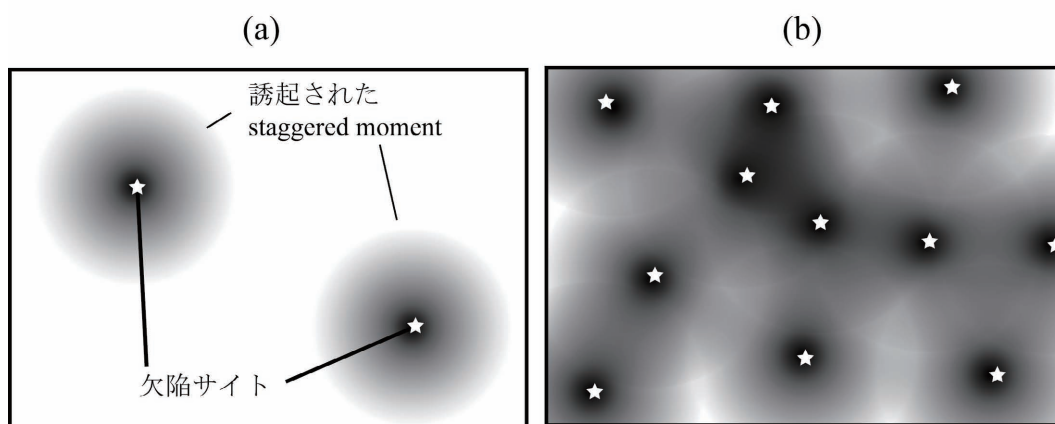


図 6 ギャップレス (あるいは非常にギャップの小さい) スピン液体における欠陥サイト周りの staggered magnetization の模式図。星は欠陥サイトを意味する。その周りに誘起 staggered magnetization 領域があり、色の濃さがその振幅を表す。(a) ごくごく僅かな欠陥サイトを含む非常に綺麗な系: 欠陥サイトがごく僅かでも、擬長距離相関のため広い領域に渡り staggered magnetization が誘起される。(b) ある程度の欠陥を含む系: staggered magnetization 領域同士が重なり合い、ランダムなスピン凍結が起こると期待される。

このような立場で考えると、今まで長い間無機系でスピン液体の探索が行われてきにもかかわらずスピン液体がなかなか見つかってこなかったことの1つの解釈ができると思われる。無機系では完全にストイキオメトリックな試料を作製することが難しく、僅かなイオン欠損・過剰が生じてしまうことがしばしばある。通常の磁性体のレベルではほとんど無視できるような欠陥量であっても、相関長が非常に伸びているような量子液体の場合、図6(b)で示したように *staggered magnetization* の領域が重なってき得る。この場合、結果として、試料全体にわたりスピングラスのようなランダムなスピン凍結が起きてしまうであろう。実際、フラストレート格子を持つ無機物質ではスピングラス的な振る舞いかなり広く見出されている。これらの試料は本来スピン液体になり得るが、スピン液体が持つ擬長距離相関のために、欠陥に非常に敏感になってしまい、僅かの欠陥でスピングラス的な状態が実現してしまっている、というのが1つのあり得る可能性ではないだろうか。

## 8. おわりに

これまで、二次元三角格子 1/2 スピン系である  $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$  において、量子スピン液体が実現していることを示してきた。この量子スピン液体は少なくとも 1.37K までギャップレスである。

以上の話は、長らく探索されてきた量子スピン液体の発見という観点で多くの研究者から興味を持っていただけており、これはこれで面白い話であろうと思いきや解説を行ってきた。しかしながら、実のところ筆者の本当の興味は、これまでの話そのものではなく、その先にある。

ギャップレス量子液体は、古典的な世界に住む我々の常識では全く想像もつかないエキゾチックな自発的対称性の破れを起こしギャップを獲得することが知られている。超伝導・超流動はまさにこの美しい典型例であり、多くの低温研究者がこの現象に惹かれている。

筆者の興味は、スピン系で実現する量子液体も、通常の粒子からなる量子液体と同様、エキゾチックな対称性の破れを引き起こすのではないかと。という点である。実際理論的にも、Fermion 系における超伝導・超流動と同様に、スピン励起がペアリング（もう少し詳しく言えば、トリプレット超伝導に対応する Cooper Pairing[14]や、同方向に運動する素励起同士の Amperean Pairing[15]など）が起きる可能性が近年指摘されている。あるいは Laughlin 達の議論から始まったように、カイラル対称性が破れた、カイラルスピン液体が成立する可能性の議論も古くからある[16,17]。このような特異な対称性の低下が実際に生じないだろうか？あるいはさらに、これを実験的に検出・証明できないだろうか？

残念ながら、先行スピン液体物質である  $\kappa\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{Cu}_2\text{CN}_3$  は、いくつかの実験結果が報告されているが、この点の議論は錯綜しているようである。 $\kappa\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{Cu}_2\text{CN}_3$  について、比熱実験は低温極限までスピン励起はギャップレスと報告している一方[18]、熱伝導測定は低温で明確にギャップが開いていることを結論付けている[19]。もし仮にスピングャップの出現が何らかの自発的対称性の破れによるものならば、どこかで相転移がなくてはいけないが、NMR のスピン-格子緩和率 ( $T_1^{-1}$ ) では、現在までの実験では、はっきりとした相転移を特徴付ける明確な異常は見出せていない[6,13]。

その一方で、本稿で解説した  $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$  に関しては、今回は紹介しなかったが、筆者は希釈冷凍機温度域の  $T_1^{-1}$  を測定しており、上記の問題に対し筆者なりの解答を得つつある。本稿では紙面の制約もあり、この最大のトピックスについて記述できなかったが、この点についてもいずれ機会があれば解説したい。

## 謝辞

本研究を進めるに当たっての共同研究者であります、田村雅史、加藤礼三、小山田明、前川覚の各



氏に感謝いたします。又、本研究の中心となった低温における NMR 測定には大量の寒剤が必要不可欠であり、LTM センターの皆様方には寒剤供給に格別の御尽力をいただいております。この場をお借りして厚く御礼申し上げます。

#### 参考文献

- [1] F. J. Dyson, E. H. Lieb, and B. Simon, *J. Stat. Phys.* **18**, 335 (1978).
- [2] T. Kennedy, E. H. Lieb, and B. S. Shastry, *J. Stat. Phys.* **53**, 1019 (1988).
- [3] たとえば, J. D. Reger and A. P. Young, *Phys. Rev. B* **37**, 5978 (1988).
- [4] L. Hulthén, *Arkiv. Mat. Astron. Fysik* **26A**, No11 (1938).
- [5] 山下穰, 京都大学低温物質科学研究センター誌 **14**, 3 (2009).
- [6] Y. Shimizu, K. Miyagawa, K. Kanoda, M. Maesato, and G. Saito, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 107001 (2003).
- [7] T. Itou, A. Oyamada, S. Maegawa, M. Tamura, and R. Kato, *Phys. Rev. B* **77**, 104413 (2008).
- [8] R. Kato, *Chem. Rev. (Washington, D.C.)* **104**, 5319 (2004).
- [9] D. A. Huse and V. Elser, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 2531 (1988).
- [10] N. Elstner, R. R. P. Singh, and A. P. Young, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1629 (1993).
- [11] B. Bernu, P. Lecheminant, C. Lhuillier, and L. Pierre, *Phys. Rev. B* **50**, 10048 (1994).
- [12] L. Capriotti, A. E. Trumper, and S. Sorella, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3899 (1999).
- [13] Y. Shimizu, K. Miyagawa, K. Kanoda, M. Maesato, and G. Saito, *Phys. Rev. B* **73**, 140407(R) (2006).
- [14] V. Galitski and Y. B. Kim, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 266403 (2007).
- [15] S. -S. Lee, P. A. Lee, and T. Senthil, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 067006 (2007).
- [16] V. Kalmeyer and R. B. Laughlin, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 2095 (1987).
- [17] G. Baskaran, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 2524 (1989).
- [18] S. Yamashita, et al., *Nature Physics* **4**, 459 (2008).
- [19] M. Yamashita, et al., *Nature Physics* **5**, 44 (2009).

#### 著者略歴



1998年 東京大学工学部物理工学科 卒業  
2003年 東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻博士課程 単位取得退学  
2004年 東京大学 博士(工学) 取得  
2003年～2005年 科学技術振興機構 (JST-CREST) 研究員  
2005年～2007年 京都大学大学院 人間・環境学研究科 教務職員  
2007年～現在 京都大学大学院 人間・環境学研究科 助教