

## 三角格子量子反強磁性系[Pd(dmit)<sub>2</sub>]塩の有限温度スピン相関

理研 田村雅史

層状有機結晶で、二量体に  $S = 1/2$  スピンが局在した Mott 絶縁体を舞台として、三角格子量子反強磁性系の実例がいくつも見つかかり、実験の俎上に乗ってきた。 $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>(CN)<sub>3</sub> で発見されたスピン液体基底状態の理解に多くの興味が寄せられているが、実験の立場から見ると、フラストレーションの効果がある有限温度の磁性にむしろ顕著に現れており、これは正三角格子との近さ（空間異方性の小ささ = フラストレーションの強さ）を現実の物質系で制御・評価する上で、価値ある情報を提供している。[Pd(dmit)<sub>2</sub>]塩シリーズは系統的構造変化を有し、スピン液体以外にも多様な状態を示すので、有限温度の磁性を探究する格好の対象である。

三角格子型 Mott 絶縁体の [Pd(dmit)<sub>2</sub>] 塩は、組成  $Z[\text{Pd(dmit)}_2]_2$  ( $Z$  は 1 価陽イオン) をもち、概ね  $Z$  の寸法が大きいほど空間異方性が小さくなる。Fig. 1(上)はスピンモデルの模式図である。空間異方性が比較的大きいものは強い  $J_1$  による正方格子状 Néel 反強磁性状態に転移し、 $Z = \text{Me}_4\text{P}$  の  $T_N = 40$  K からフラストレーションが強くなるにしたがって低下し、 $Z = \text{EtMe}_3\text{Sb}$  では磁気秩序を示さなくなってスピン液体基底状態をもつと考えられる。どの塩も 50-100 K 領域に磁化率の広幅ピークを示し、これより高温側は三角格子モデルでよく再現される類似した磁性だが、フラストレーションがない反強磁性系とはピーク温度と高さが著しく異なる。 $T_N$  直上でフラストレーションから解放され、反強磁性相関の成長を示す急減があり、 $Z$  の違い（空間異方性）はここに現れている (Fig. 1(下))。 (なお、 $T_N$  の高低で整理される系列以外に、 $Z = \text{Cs}$ ,  $\text{Et}_2\text{Me}_2\text{Sb}$  では特異な価数転移が 60-70 K に現れ、また  $Z = \text{EtMe}_3\text{P}$  では 25 K でスピングャップ相への転移 (VB 秩序) が見られる。後者では 0.2 GPa 程度の加圧で VB 秩序にかわって超伝導が現れ、一重項相関と超伝導の関係が注目される。)

異方的三角格子の磁性を特徴づける急減は、フラストレートして短距離相関しかもたない高温の状態から、長距離反強磁性相関が発達した状態への変化を表す。三角格子に近い系ではこれが  $J/k_B$  よりずっと低温で起きることに特徴があり、基底状態の長波長スピン波的励起に比べてわずかに高いところに短波長・局所的励起があることを意味する。低温では反強磁性一重項相関が  $J_1$  正方格子上に制限されて長距離相関を与えるが、高温で  $J_2$  上にも一重項相関が発生するとフラストレートすると考えられ、短波長励起は空間異方性  $J_1$ - $J_2$  のエネルギースケールで生じる。この短波長励起は、 $J_1$  上相関のもつ鏡映対称性に  $J_2$  による反対称性を混ぜて、三角カイラル対称性を見かけ上回復する性格をもつと考えられ、高温で一連の物質が同様の三角格子の磁性を示すことに対応する。このことはフラストレートした系では長距離相関が抑制されて局所的自由度が前面に現れやすいという一般的性質にも沿っている。最近、 $\text{Cs}_2\text{CuCl}_4$  の中性子散乱に関して、級数展開法や裏格子上的 vortex 対の理論によって、上記のロトンのような低エネルギー短波長励起の存在が議論されている。有限温度の挙動も、定性的には同じように捉えられ、量子スピン系のフラストレーション制御・評価の一般的な枠組みを与えるものと考えている。

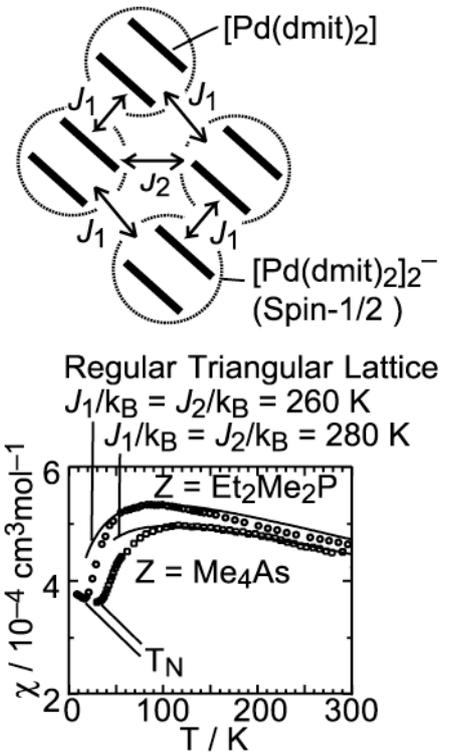


Fig. 1 上: [Pd(dmit)<sub>2</sub>]塩の三角格子構造模式図, 下: 反強磁性秩序を示す  $Z = \text{Me}_4\text{As}$ ,  $\text{Et}_2\text{Me}_2\text{P}$  の磁化率温度依存性。