

三角格子の異方性制御による、量子スピン液体の発現；

Et₂Me₂As_xSb_{1-x}[Pd(dmit)₂]₂ 混晶系の磁性状態

(理研¹、阪大理²、東理大理工³、分子研⁴)

上田康平¹, 崔亨波¹, 山下智史², 福永武男³, 山本浩史^{1,4}, 加藤礼三¹

Quantum spin liquid state induced by control of frustration parameter

in triangular lattice; Magnetic state of Et₂Me₂As_xSb_{1-x}[Pd(dmit)₂]₂

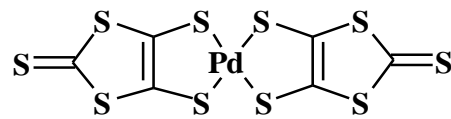
mixed crystals

(RIKEN¹, Osaka Univ.², Tokyo University of Science³, Institute for Molecular Science.⁴)

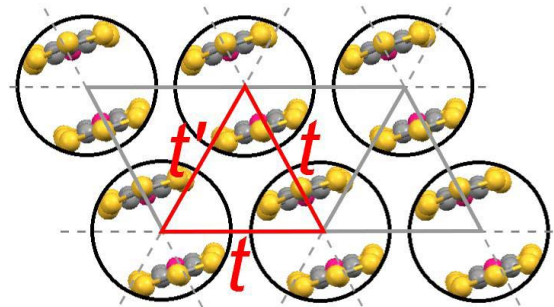
Kouhei UEDA¹, Hengbo CUI¹, Satoshi YAMASHITA², Takeo FUKUNAGA³,

Hiroshi YAMAMOTO^{1,4}, Reizo KATO¹

【序】三角格子上に電子スピンを並べた時、幾何学的フラストレーションにより磁気秩序が妨げられ、量子揺らぎに支配された量子スピン液体 (QSL) という状態が現れる。近年、EtMe₃Sb[Pd(dmit)₂]₂ 上で QSL が実現されたことから、その量子状態の解明を目指して多くの研究が開始されたが、未だ結論は得られていない。(Cation⁺)[Pd(dmit)₂]₂ は、結晶中で二量体[Pd(dmit)₂]₂ あたり 1 個の電子 (スピン 1/2) が局在するモット絶縁体である。二量体間の移動積分 (t, t') は、この系の三角格子が近似的に二等辺三角形を成すことを示しており、その比 (t'/t) がフラストレーションの度合いを示すと考えられる。対カチオンの大きさを変えることで、同形構造を保ちながら t'/t の値を変化させることができ、様々な基底状態を作り出せる。混晶化によって t'/t を精密に制御できれば、QSL と隣接相の境界上での振る舞いを明らかにできると考えられる。我々は、QSL を発現する EtMe₃Sb 塩と、Me₄Sb 塩との混晶を合成し、混晶上に QSL 様の振る舞いを観測し、報告してきた。この QSL 様の



Pd(dmit)₂ 分子



[Pd(dmit)₂]₂ 二量体の配列

振る舞いが、 t'/t で制御されたフラストレーション電子系の本質的性質であるか、それとも、 EtMe_3Sb^+ カチオンの偏在や、カチオンの混合による乱れの効果等によるものかを明らかにすることは、電子物性を論じるうえで欠くことができない。

そこで本研究では、反強磁性秩序(AFLO)を与える $\text{Et}_2\text{Me}_2\text{As}$ 塩と、電荷秩序(CO)を与える $\text{Et}_2\text{Me}_2\text{Sb}$ 塩との混晶塩 ($\text{Et}_2\text{Me}_2\text{As}_x\text{Sb}_{1-x}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$) と、異なる T_N を与える、 Me_4As 塩と Me_4Sb 塩との混晶塩 ($\text{Me}_4\text{As}_{1-x}\text{Sb}_x[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$) を用い、三角格子の異方性制御による QSL 実現の検証と、 t'/t が変化していく過程で、秩序状態がどのように現れるかを、磁化率測定によって調べた。磁化率は Quantum Design 社製 MPMS で室温から 2 K まで測定した。

【結果と考察】

(a) $\text{Et}_2\text{Me}_2\text{As}_x\text{Sb}_{1-x}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$ 混晶

x が大きな領域では、 $\text{Et}_2\text{Me}_2\text{As}$ 塩 ($x=1$) で 16 K であった AFLO 転移温度 T_N は、 x の減少とともに急激に低下した。 $x \leq 0.65$ の領域では、2 K まで、AFLO 転移は検出されなかった。このような、 T_N の急激な減少は、 $(\text{Me}_4\text{Sb})_{1-x}(\text{EtMe}_3\text{Sb})_x[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$ 混晶塩でも観測されている。一方、 $\text{Et}_2\text{Me}_2\text{Sb}$ 塩 ($x=0$) で 70 K であった CO 転移温度 T_{CO} は、 x の増加とともに急激に低下した。 $x \geq 0.25$ の領域では、2 K まで、CO 転移は検出されなかった。

$0.25 \leq x \leq 0.65$ の領域では、AFLO、CO 転移ともに検出されず、本混晶上で、量子スピン液体状態が発現しているものと理解される。適切に異方性を制御することで、QSL を与えない二種類のカチオンの混晶においても、QSL が発現したことは、一連の $(\text{Cation}^+)[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$ 塩で観測されてきた、量子スピン液体が、 t'/t に特徴づけられた、電子状態の本質的ふるまいであることを強く支持する。

(b) $\text{Me}_4\text{As}_{1-x}\text{Sb}_x[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$ 混晶

QSL 近傍の混晶が、 t'/t の変化に伴って急激に、秩序化温度が低下するのに対し、それぞれ 35 K と 15 K に T_N を持つ、 Me_4As 塩と Me_4Sb 塩の混晶は、組成 x にほぼ比例して、 T_N が変化した。これは、 $(\text{Me}_4\text{Sb})_{1-x}(\text{EtMe}_3\text{Sb})_x[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$ や $\text{Et}_2\text{Me}_2\text{As}_x\text{Sb}_{1-x}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$ で観測された、QSL 近傍の T_N の急激な低下が、カチオンの混合による乱れの効果等によるものではなく、電子状態を反映したものであることを示唆する。

