

数ピース、あわせて 297.7 μg を試料ステージに二次元面が磁場に対して垂直になるように配置した。

3. 結果と考察

Fig. 2 に ^3He ヘリウム温度領域で測定した $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$ の熱容量を $C_p T^{-1}$ vs T^2 プロットを用いて示している。分子性化合物のフォノン低温領域まで大きな値をもつが、約 2K 以下はデバイの T^3 則であらわすことができる。 T^3 則に従って、熱容量の低温への外挿を行ったところ約 20~30 $\text{mJK}^{-2}\text{mol}^{-1}$ の係数 γ を示す T -linear 項がみられた。この点は κ -(BEDT-TTF) $_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$ と同様の傾向であり、少なくとも基底状態からの励起にはギャップがないことを示している。 κ -(BEDT-TTF) $_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$ の比例係数 γ は 15 $\text{mJK}^{-2}\text{mol}^{-1}$ 程度であり、 $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$ の方が大きな値になっている。一方で、3 T の磁場を印加したところ、熱容量および T -linear 項の係数は、わずかな磁場依存性を示したが、 T -linear な項には大きな影響を与えておらず、磁場によって液体基底状態が変化しないことがわかる。2つの物質でみられた γ の値の違いは、重なり積分の絶対値の違いを反映したものと考えられ、スピン液体の性質に各ダイマー間の相互作用の強さが密接に関係している可能性を示している。希釈冷凍装置を用いてより低温領域での熱容量を測定したところ、約 1K 以下から零磁場で $C_p T^{-1}$ の顕著な増大がみられた。これは、カチオン部に存在するメチル基の回転運動に伴うショットキー熱容量によるものと思われ、希釈冷凍機温度での $C_p T^{-1}$ vs T^2 のプロットから T -linear 項を評価するのは難しいことがわかった。そのため、格子熱容量が十分小さい 1 K 以下で、温度を固定して、それぞれの温度での $C_p T^{-1}$ の値を磁場の関数としてプロットしたものが、Fig.3 である。この図から、先の ^3He 温度のデータを外挿した温度に比例する項である 20-30 $\text{mJK}^{-2}\text{mol}^{-1}$ が、各磁場で存

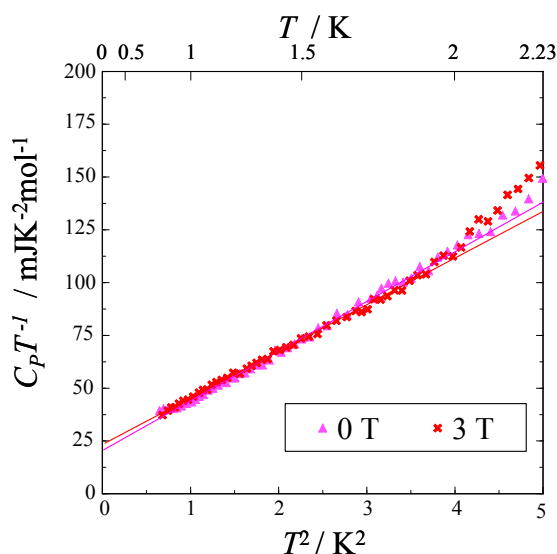


Fig.2 Low temperature heat capacity of $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$.

在していることが示唆され、Fig.2 のデータと整合することがわかった。さらに、 $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$ では 3.2 K をピークトップとするブロードな熱異常がみられ、これより、 $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$ でも κ -(BEDT-TTF) $_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$ 高温の常磁性状態から低温のスピン液体状態へのクロスオーバー現象が起きているものと考えられる。ピークトップ温度 5.7 K と比べると温度が半分程度であり、ピークでのエントロピーも小さくなっている。今後は、 $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$ に対する希釈冷凍機温度での熱容量測定や重水素置換した κ -(BEDT-TTF) $_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$ の熱容量を測定し、比較することによってスピン液体状態の形成要因について理解していきたいと思ひ。

4. まとめ

二次元のダイマー三角格子構造をもつ $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$ の熱力学的な測定を低温、強磁場下で行った。温度に比例する項の存在し、それが磁場中でも抑制されず残っている可能性が示唆され、 κ -(BEDT-TTF) $_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$ と同様に液体基底状態になっていることが示唆される。

謝辞

本研究に用いた試料は、理化学研究所 加藤礼三先生、東京理科大・理工 田村雅史先生にご提供頂きました。御礼申し上げます。

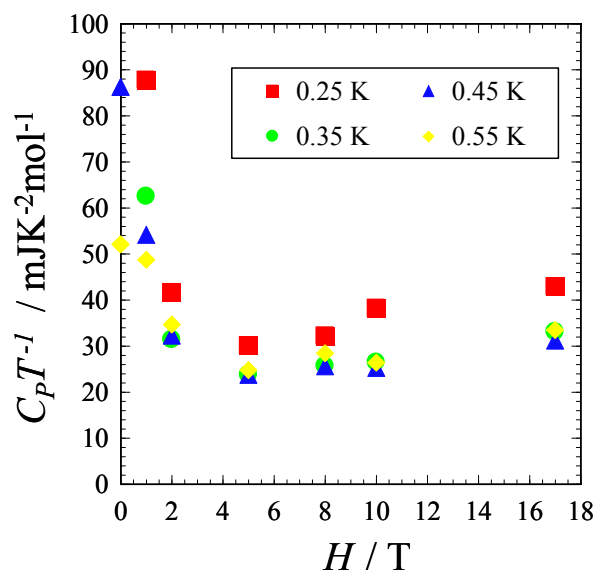


Fig.3 $C_p T^{-1}$ values of $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$ plotted as a function of magnetic field.

参考文献

- 1) S. Yamashita, Y. Nakazawa, M. Oguni, Y. Oshima, H. Nojiri, Y. Shimizu, K. Miyagawa and K. Kanoda, *Nature Physics* 4, 459-462 (2008).
- 2) 山下智史, 中澤康浩 大阪大学低温センターだより 144, 19-23 (2008).
- 3) M. Tamura *et al.* *J. Phys. Condens. Matter* 18 1-6(2006).