

# 新しいスピラダー物質の磁性と相転移

Magnetic properties and phase transitions of a new spin ladder compound

プロジェクト代表者：本多善太郎（理工学研究科・准教授）

Zentaro Honda, (Graduate School of Science and Engineering)

結晶の特定の方向にのみ磁気相互作用が働く低次元磁性体はスピンの量子性が顕著になることで知られている。スピラダーは、磁性イオンの間に梯子状に交換相互作用が働く磁性体であり、交換相互作用が反強磁性的である場合には、量子効果によって磁性を失う。また、電荷注入による超伝導の発現が報告されている系であり、その磁性に大変興味をもたれている。

$\text{Cu(A)X}_2$  は銅(II)イオン( $d^9$ ,  $S=1/2$ )が足方向にジアジン(A)、棧方向にハロゲン(X)によって架橋された梯子状の結晶構造を有しており (図 1)、銅イオン間に働く交換相互作用(J)が反強磁性的であることから、スピン  $S=1/2$  のスピラダー候補物質である。銅イオン間の J の大きさはそれらを架橋する有機分子 A およびハロゲン X の種類によって変化するため、元素置換によって様々な J を持つスピラダーを得ることができる。また、この系の J は酸化物等に比べて小さいため、磁場の効果が顕著であることが予想される。一般的にスピラダーではシングレット対が形成されやすく、スピギャップを伴う基底状態が出現することが知られている。このような物質に磁場を印加した場合、非磁性基底状態と磁氣的励起状態の入れ替わりによる磁場中相転移が予想される。スピンの量子揺らぎが外部磁場等によって押さえられ、基底状態が変化する転移は、熱揺らぎと磁気相互作用の競合で生じる相転移と区別して量子相転移とよばれる。

本プロジェクトでは  $S=1/2$  スピラダーにおける磁場中相転移について調べることを目的に、 $\text{Cu(A)X}_2$  における A と X を変えた一連の新しいスピラダー物質を合成し、磁気、比熱測定によって低温強磁場物性の解明を行った。

ハロゲン  $X=\text{Cl, Br}$  化銅及びジアジン  $A=\text{Q, DMP, DEP}$  のエタノール溶液を原料として拡散法を用いて単結晶の育成を行った。その結果およそ 1mm 角の板状結晶及び長さ 2mm の針状単結晶が得られた。SQUID 磁束計を用いて得られた単結晶の磁気測定を行ったところ、すべての試料において低次元磁性体特有の緩やかな帯磁率の極大と、低温でスピギャップを反映した指数関数的な帯磁率の温度依存性が観測された。図 2 に一例として  $\text{Cu(DEP)Br}_2$  の帯磁率の温度依存性を示す。さらに磁場による基底状態及び磁気励起の変化を調べるため、熱緩和法を用いた磁場中比熱の測定を行った。図 3 は  $\text{Cu(DEP)Br}_2$  の単結晶を用いて行った磁場中比熱測定の結果である。無磁場中では非磁性の基底状態と磁気励起におけるギャップを反映して比熱は連続的な温度依存性を示し磁気秩序は見られない。一方、8T 以上の磁場中では磁気相転移が起こり、比熱に異常が観測された。この現象は、磁場によってゼーマン分裂した磁氣的な励起状態の一つが基底状態と交差し、基底状態が磁氣的状態に量子相転移したためであると考えられる。

本プロジェクトでは新たなスピラダー物質の単結晶作成及び低温強磁場物性測定により、スピラダー物質における磁場誘起磁気相転移現象を見出した。今後、本物質を用い中性子線回折等の実験を行うことによって、低次元磁性体における量子効果の解明が進むと思われる。

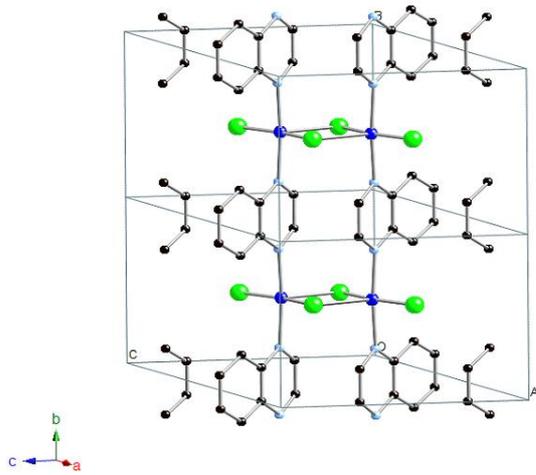


図1. Cu(Q)Cl<sub>2</sub>の結晶構造

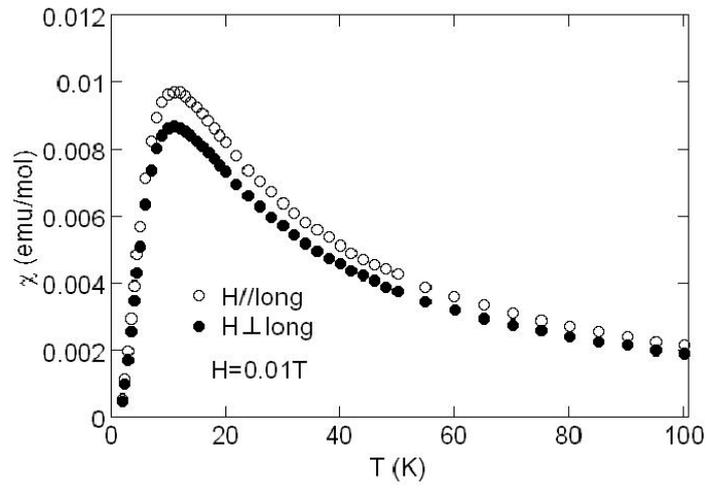


図2. Cu(DEP)Br<sub>2</sub>の帯磁率

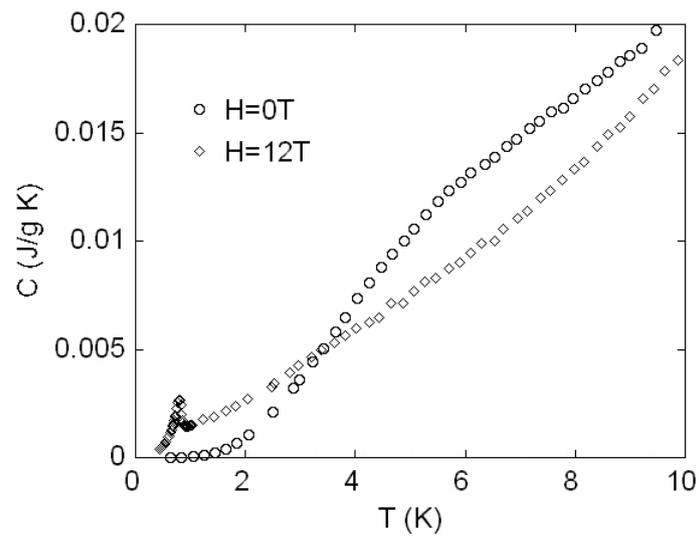


図3. Cu(DEP)Br<sub>2</sub>の磁場誘起相転移の様子