

## スピンパイエルス転移の意図的操作：静水加圧効果と一軸性圧縮効果

1次元格子以上に等間隔に並んだスピン量子数( $S$ ) $1/2$ のスピンからなる物質が、ある温度以下で格子変形を起こし、その格子エネルギー損を上回るスピン間相互作用によるエネルギー得によってスピン二量体化を起こす現象を、スピンパイエルス転移と呼ぶ。このスピンパイエルス系は、格子系と強く結合した量子スピン系として捉え直すことができ、理論的には、その転移温度はスピン間相互作用とスピン・格子の結合定数に比例すると理解される。 $\text{CuGeO}_3$  などごく少数の無機物質を除いて、今まで発見されたスピンパイエルス物質のほとんどは有機物質である。それらの外的ストレスに対する応答（圧力応答）は多彩であり、スピンパイエルスが安定になるものもあれば、不安定になるものもあり、中には超伝導体に変化するものまである。

最近、九州工業大学的美藤正樹氏らの研究グループは、有機スピンパイエルス物質  $\text{BBDTA} \cdot \text{InCl}_4$  について、静水加圧と一軸性圧縮によって結晶格子に異なる変形を加える実験を行い、同物質におけるスピンパイエルス転移メカニズムの詳細を明らかにすることに成功した。この研究成果は、日本物理学会が発行する英文誌 *Journal of the Physical Society of Japan (JPSJ)* の 2009 年 12 月号に掲載される。

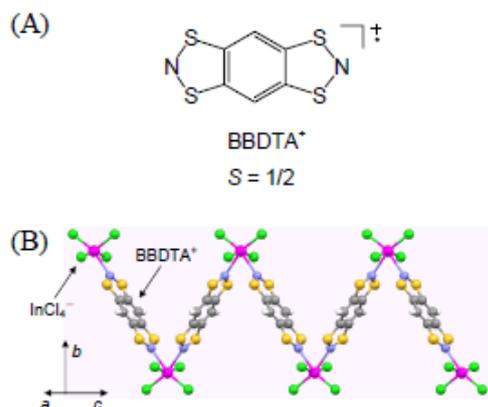


図 1. BBDTA<sup>+</sup>の分子構造(A)とスピンパイエルス物質  $\text{BBDTA} \cdot \text{InCl}_4$  の鎖状構造(B)

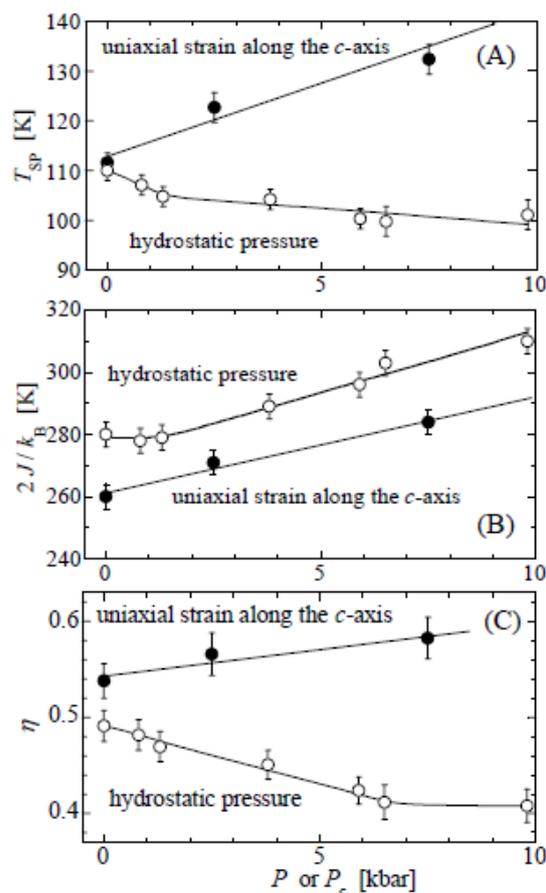


図 2.  $T_{\text{sp}}$ ,  $2J/k_B$ ,  $\eta$  への静水加圧効果 (白丸)と一軸性圧縮効果(黒丸)

本研究で対象にしたスピンプイエルス物質  $\text{BBDTA} \cdot \text{InCl}_4$  は、図 1 に示すように磁性を担う有機ラジカルカチオン  $\text{BBDTA}^+$  ( $S = 1/2$ ) と反磁性アニオン  $\text{InCl}_4^-$  とが配位結合でジグザグにつながった 1 次元構造を有する。室温では  $\text{BBDTA}^+$  分子は鎖内で等間隔に並んでおり、 $c$  軸方向に 1 次元磁性ネットワークを形成している。この物質は 108 K でスピンプイエルス転移を起し、転移温度以下では  $\text{BBDTA}^+$  が反磁性アニオンの方向に変位してスピンドイマー化が実現する。この物質に等方的な外的ストレス（静水圧）を印加した場合、鎖方向のスピンドイマー相互作用は増加するものの、格子変形の観点からは  $\text{BBDTA}^+$  の変位を抑制する効果があるため、結果的にスピンプイエルス転移温度 ( $T_{\text{sp}}$ ) は減少した。一方、一軸性ひずみ法とよばれる特殊な圧縮法で鎖と垂直な方向への格子変形を抑止し、鎖方向にのみ圧縮ひずみを加えた場合、前者の寄与が優勢となり、転移温度は上昇した。つまり、静水圧の結果とは全く逆の傾向を示した。この現象は、鎖内スピンドイマー相互作用 ( $2J/k_B$ ) とスピンドイマー・格子結合定数 ( $\eta$ ) を内包するスピンドイマー系のハミルトニアンを用いて定量的に説明された（図 2）。これらの結果は、柔軟かつ異方的な構造を好む有機物質からなるスピンプイエルス物質に、静水圧法と一軸性ひずみ法を使い分けることによって結晶格子を意図的に圧縮し、スピンドイマー化転移を巧みに操作することができたことを意味する。

本研究は、スピンプイエルス転移を理解する研究としては、過去のスピンプイエルス系化合物の圧力効果の研究と比べて、二種類の圧縮法による転移の変化のメカニズムが明解であり、格子系と強く結合した量子スピンドイマー系の物理を理解する上で典型的な実験結果を提供するものとして多くの研究者の注目を集めている。本研究で成功を収めた意図的物性操作は、強結合スピンドイマー・格子系に限らず、様々な物性現象の解明とその応用開発に展開されていくものと期待される。

論文掲載誌： J. Phys. Soc. Jpn., Vol.78, No.12, p.124705

電子版：<http://jpsj.ipap.jp/link?JPSJ/78/124705> (11 月 25 日公開済)

<情報提供： 美藤 正樹 (九州工業大学) >