

平成27年度 トピックス

分子・物質合成プラットフォームにおける利用成果

多次元磁気格子を形成する有機ラジカル磁性体の低温磁気構造解明

^a大阪府立大学, ^b東京大学, ^c防衛大学校

山口博則^a, 岩瀬賢治^a, 天谷直樹^a, 小野俊雄^a, 細越裕子^a, 大久保毅^b, 橋高俊一郎^b, 榊原敏郎^b, 荒木幸治^c

【目的】

隣接するスピン間で磁気相互作用が競合するフラストレート磁性体は、量子揺らぎの効果が強く現れ、従来の磁気秩序とは本質的に異なる、新しい量子磁気状態を取ると考えられ、近年活発に研究が行われている。最も単純な三角格子磁性体は実験的・理論的研究が進んでいるが、本研究では、初めて五角形を基盤とする三次元的な磁気格子の合成に成功した。低温において、磁化が飽和する近傍で、磁気相の出現を観測した。この性質を理解する上で、格子における磁気相互作用を決定することは不可欠であるため、分子科学研究所の微小結晶用単結晶X線回折装置Rigaku社 MERCURY CCD-3を用いて、25 Kにおける精密構造解析を行った。

【成果】

3-(2,6-dichlorophenyl)1,5-diphenyl verdazylのβ相結晶について、結晶構造解析の結果、空間群 $Fdd2$ に属すること、結晶学的に独立な2分子が含まれ、一方は分子内に2回軸が存在することが明らかになった。そのため、分子Aと分子Bの存在比は2:1となり、-A-A-B-の三倍周期鎖が形成された。鎖は対角映進で関係づけられる分子A間の接近で架橋され、その結果、部分的に頂点共有された五角形の三次元格子が形成された。25 Kで決定した部分座標を用いて、分子軌道計算を行った (Gaussian09, UB3LYP/6-31G)。その結果、分子A-A間の2種類の相互作用はいずれも反強磁性的であったが、A-B間には強磁性的相互作用が働き、磁気相互作用が競合するフラストレート磁性体であることが明らかになった。磁化曲線は、磁化の磁場微分が、3.3-4 Tの磁場領域で一定値を取る特異な挙動を示し、この磁場中での比熱の温度依存性は、相転移へ向かう傾向を示した。これらは、五角形フラストレート磁性体における量子性を反映した新しい磁気状態の発現を示すものである。

この成果は、*Scientific Reports*, 5, 15327/1-6 (2015)に発表した。

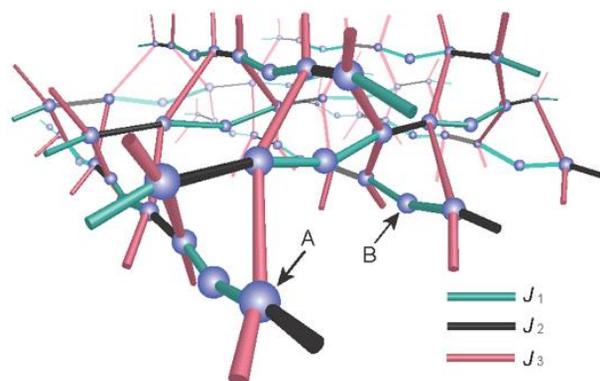


図1. 三次元的な五角形格子の模式図、丸は $S=1/2$ を表す。 J_1 は強磁性的相互作用、 J_2 , J_3 は反強磁性的相互作用の、フラストレート磁性体。

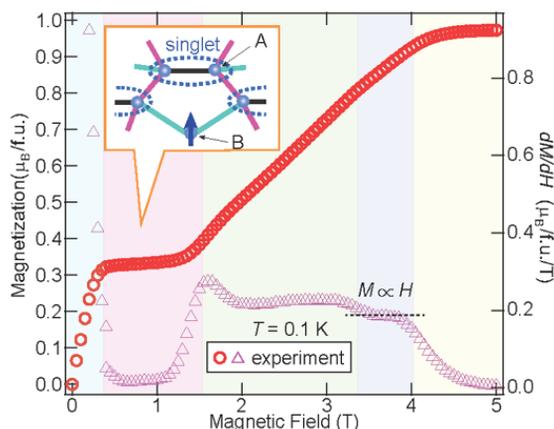


図2. 0.1 Kにおける磁化曲線。飽和近傍で磁化が磁場に比例する。