

## 論文の内容の要旨

論文題名 遠赤外分光法を用いた強磁場下における  
スピンパイエルス物質  $\text{CuGeO}_3$  の研究

氏名 竹端 寛治

磁性体において、スピン間に働く相互作用の次元性はその物性、特に磁気的特性を決定する重要な要素の一つである。磁気的異方性の強い低次元磁性体においては、その低次元性により量子揺らぎが顕著となり、強磁性や反強磁性などの磁気秩序が現れにくくなる。特に、特定一方向の磁気的相互作用が他方向の相互作用に較べ無視できるくらい強い一次元磁性体においてその傾向が顕著に現れ、スピンパイエルス転移や、ハルデンギャップ等の興味ある磁気的特性が発現する。 $\text{CuGeO}_3$ は無機物質で初めてスピンパイエルス転移が発見された物質であり、この物質では中性子非弾性散乱や不純物置換が可能となったため、それまでの有機スピンパイエルス物質では得られなかった詳細な磁気的励起スペクトルの観測や不純物置換効果などの重要な知見が得られている。しかし、強磁場中で現れる不整合相に関する研究などが必ずしも十分でなく、またスピンパイエルス転移発現と密接に関連しているスピン-フォノン結合モードが観測されない。

本研究では、スピン-フォノン結合モードの観測とその特性評価によるスピンパイエルス転移発現機構の解明を目的とし、 $\text{CuGeO}_3$ に関して、二量体相、及び不整合相にわたる広い温度および磁場範囲で偏光測定も含めた遠赤外分光測定を行った。この研究を行うため、金属材料技術研究所（現 物質・材料研究機構）強磁場マグネッ

トを利用した高精度な強磁場中遠赤外領域分光装置を開発した。

遠赤外分光の温度変化の測定からは、スピンパイエルス転移に伴って  $44\text{ cm}^{-1}$ 、 $63\text{ cm}^{-1}$ 、 $98\text{ cm}^{-1}$ 、 $284\text{ cm}^{-1}$ 、 $312\text{ cm}^{-1}$  に新たな吸収線が現れ、温度の低下と共に吸収強度の増大が観測された。これらのうち、 $44\text{ cm}^{-1}$  の吸収線は一重項基底状態から三重項励起状態への光学遷移による磁氣的励起、 $284\text{ cm}^{-1}$  と  $312\text{ cm}^{-1}$  の吸収線は折返しフォノンによる吸収と同定されていた。一方、 $63\text{ cm}^{-1}$ 、及び  $98\text{ cm}^{-1}$  における吸収線は本研究により発見されたものである。後者については、低温低磁場下で実現する二量体相における吸収線の温度磁場依存性から折返しフォノンによるものと同定した。他方、前者の吸収線について、二量体相での温度及び磁場依存性またそのエネルギーや吸収線の形を解析することで、一重項基底状態から連続帯状態への光学遷移による磁氣的励起によるものと同定された。この磁氣的励起が光学的測定により観測されたのは初めてである。

強磁場誘起の不整合相での吸収線の詳細な測定からは次の点が明らかにされた。即ち、既知の折返しフォノンでは分裂しないのに対し、 $98\text{ cm}^{-1}$  の折返しフォノンのみが不整合相で分裂を示すことを見いだした。この分裂の分裂幅は不整合相における不整合性に比例する。この不整合相での特異な分裂を解析した結果、この  $98\text{ cm}^{-1}$  の折返しフォノンが強いスピン-フォノン結合を示す、即ち、本研究で新たに発見された  $98\text{ cm}^{-1}$  の吸収線はスピンパイエルス転移を引き起こすスピン-フォノン結合モードであると同定された。CuGeO<sub>3</sub> におけるスピンパイエルス転移発現を明らかにする上で重要な発見である。

低濃度不純物置換された CuGeO<sub>3</sub> における  $98\text{ cm}^{-1}$  の折返しフォノンの分裂や強度変化などの挙動を調べることにより、低温低磁場相や高温低磁場相、また未だに明らかになっていない低温強磁場相や高温強磁場相の特性を調べた。その結果、低温低磁場相での  $98\text{ cm}^{-1}$  折返しフォノンの吸収強度の減少から反強磁性秩序とスピンパイエルス秩序の競合が示される。折返しフォノンの強度変化からこのような競合が示されたのは初めてである。また、低温強磁場相、及び高温強磁場相における  $98\text{ cm}^{-1}$  折返しフォノン分裂の磁場依存性を解析した結果、スピンソリトンと不純物間の相互作用の存在が示唆された。その相互作用は、高温強磁場相に較べ低温強磁場相においてより強いことが示された。