

# SrCu<sub>2</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> の厳密なダイマー状態と磁化プラトー

東京大学 物性研究所 上田 和夫, 宮原 慎

## 1 はじめに

最近影山らは SrCu<sub>2</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> という 2次元系物質の磁氣的性質に関する研究をおこなった [1]. NMR によりこの物質のスピンの励起には約 30 K のスピンギャップが開いていることがわかり, スピン帯磁率は 20 K 付近で急激な減少を示した. また, 磁化過程において, 磁化 1/4 と 1/8 のところで磁化プラトーが観測された.

SrCu<sub>2</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> は Sr<sup>2+</sup> 面と CuBO<sub>3</sub> 面からなる層状物質である. ここで CuBO<sub>3</sub> 面は, 各層毎に向きが異なり, ある面とその面を 90 度回転させた面が交互に積み重なった構造をとる. この物質では Cu<sup>2+</sup> イオン上に 1/2-スピンが局在しており, BO<sub>3</sub> 分子を介してスピン間相互作用が働くと考えられる. その一方で CuBO<sub>3</sub> 面間の相互作用は Sr<sup>2+</sup> イオンを間にはさむため小さいと考えられる. ここで最近接相互作用  $J$  と次近接相互作用  $J'$  の 2 種類の相互作用を考えるとすると, SrCu<sub>2</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> は図 1 (a) のような 2次元ハイゼンベルク模型で表される. 我々はこの模型を用いて, SrCu<sub>2</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> の磁氣的性質を論じた.

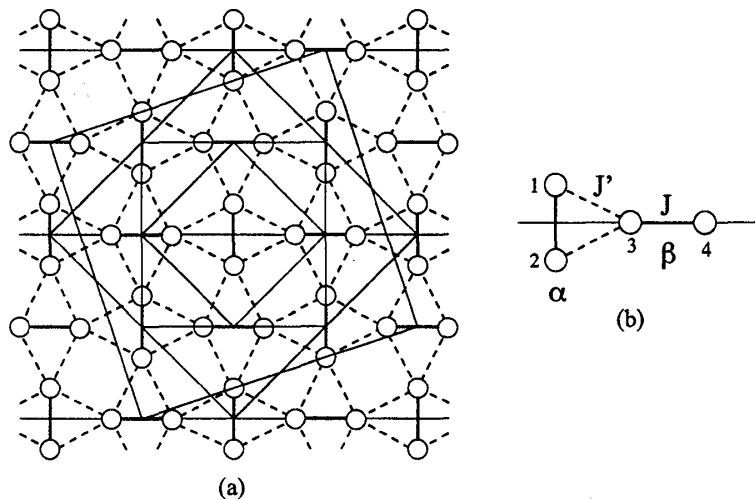


図 1: (a) SrCu<sub>2</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> における 2次元ハイゼンベルク模型. 細い実線は正方形のユニットセルをあらわす. (b) 再近接  $J$ -ボンド間の相互作用をしめす基本ユニット.

## 2 基底状態

図 1 (a) のモデルは  $J' = 0$  の極限で孤立ダイマー系になっており、 $J = 0$  の極限では 2 次元正方格子と等価である。このモデルは幾何学的に 2 次元の Shastry-Surtherland 模型と同等であり、Shastry と Surtherland は 任意の  $J'$  において  $J$  ボンド上でスピンスングレットを組むような状態

$$|\Psi_g\rangle = \prod_{\alpha} \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\rangle_{\alpha} - |\downarrow\uparrow\rangle_{\alpha}). \quad (1)$$

が固有状態となっていることを示した [2]。この厳密な固有状態は図 1 (b) の基本ユニットを考えたとき、反転に対して  $\alpha$  ボンド上のシングレット状態が odd パリティをもつために実現している [3]。

$J' = 0$  の極限では式 (1) が基底状態となることは自明である。一方  $J = 0$  の極限では、この系の基底状態は反強磁性秩序をもつ。厳密対角化の計算をおこなった結果、転移点  $(J'/J)_c$  で 2 つの状態間の量子相転移がおこなっていることがわかり、 $J'/J < (J'/J)_c$  で基底状態は式 (1) のシングレットダイマー状態となり、 $J'/J > (J'/J)_c$  では Néel 状態が基底状態となることがわかった。厳密対角化の結果と変分計算の結果より  $(J'/J)_c = 0.7(0.01)$  と転移点が求まった [3]。

ここで  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  の 3 次元構造を考えよう：図 1 (a)。今、面間の相互作用を  $J''$  とする。3 次元性を考慮したこのモデルでも、式 (1) のような  $J$ -ボンド上でシングレット形成した状態が固有状態となっている [4]。このことも図 2 (b) の面間をつなぐ基本ユニットを考えたとき、反転に対して  $\alpha'$  ボンド上のシングレット状態が odd パリティをもつことによる。しかし、現実の系では面間の相互作用は小さく、系に与える影響も小さいと考えられる。以下の議論では  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  を 2 次元系モデルとして考える。

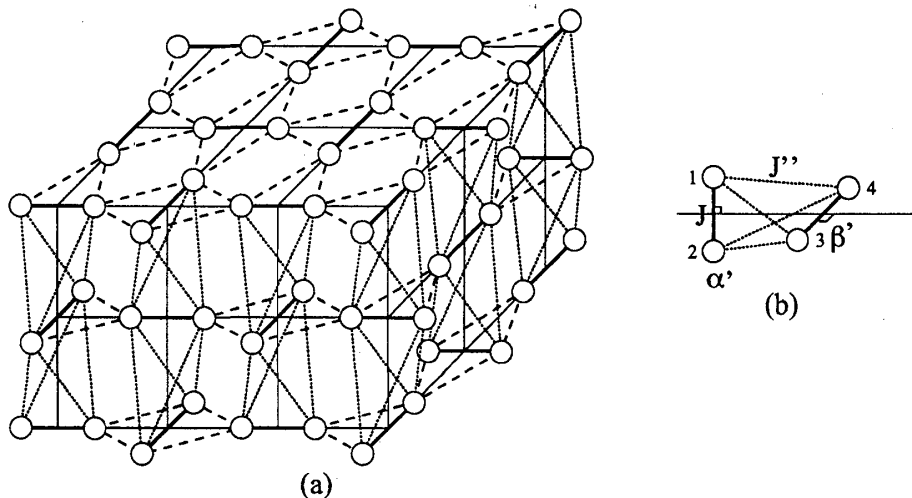


図 2: (a)  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  における 3 次元ハイゼンベルク模型。 (b)  $J$ -ボンド間の面間相互作用をしめす基本ユニット。

### 3 SrCu<sub>2</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> の交換相互作用の大きさ

帯磁率の高温データとスピングャップの大きさをを用いて, SrCu<sub>2</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> のスピン間相互作用の大きさ  $J$  と  $J'$  を見積もる.

帯磁率は, 温度 150 K 以上の高温側ではキュリーワイス的な振舞いをしている. この時, ワイス定数  $\theta = 92.5$  K,  $g$ -値 2.14 となる [1]. ここで

$$\theta = \frac{J + 4J'}{4} \quad (2)$$

である.

NMR の実験によりスピングャップの大きさが約 30 K になることがわかっている. また,  $J'/J \ll 1$  の極限から摂動計算を行ないスピングャップ  $\Delta$  を求めると,

$$\Delta = J \left( 1 - \left(\frac{J'}{J}\right)^2 - \frac{1}{2}\left(\frac{J'}{J}\right)^3 - \frac{1}{8}\left(\frac{J'}{J}\right)^4 \right) \quad (3)$$

をえる.

式 (2) と式 (3) より,  $\theta = 92.5$  K,  $\Delta = 30$  K となるような相互作用  $J$  と  $J'$  を求めると  $J = 100$  K,  $J' = 68$  K が得られる. 従って,  $J'/J = 0.68$  であり, SrCu<sub>2</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> はダイマーシングレットの基底状態をもつ転移点近傍にある物質であることがわかる. これらのパラメータを用いて, 量子転送行列法を行ない帯磁率の温度依存性を計算した. その結果を図 3 に示す. これらのパラメータで実験結果がよく再現されている.

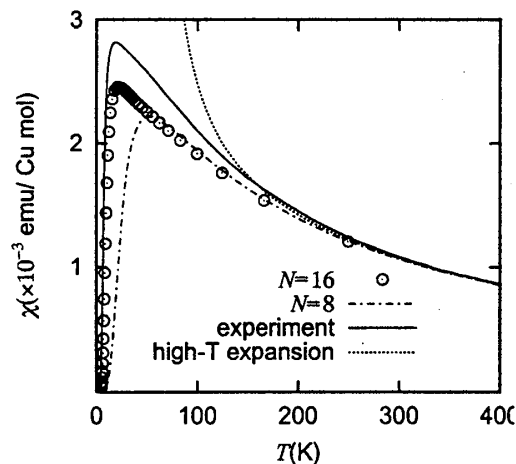


図 3: 帯磁率の温度依存性. 実験結果を実線であらわす. 丸がスピン数 16 の時の, 一点鎖線がスピン数 8 の計算結果であり, 点線は 3 次までの高温展開の結果を示す.

### 4 磁化過程

トリプレット励起のエネルギーを摂動計算を用いて計算すると, 摂動の 5 次以下では, トリプレット励起は完全に局在しており, 6 次ではじめてトリプレット励起のホッピングがおきることが

示される. このことにより このモデルはトリプレット励起の局在性が強い系であることがわかる. そのため, 適当な磁場中では, トリプレット励起の結晶化が起こると期待される. 磁場を増加していくと励起されたトリプレットが結晶化し, その結晶化状態がエネルギー的に安定となる磁化で磁化プラトーが出現すると考えられる.

相互作用が等方的であるとすれば, そのような安定状態は正方形のユニットセルで実現すると考えられる. 図 1(a) にあるように, そのようなユニットセルはスピン数  $N = 4, 8, 16, 20, 32, \dots$  で可能であり, それぞれのユニットセルに対応して  $1/2, 1/4, 1/8, 1/10, 1/16, \dots$  のプラトーが出現すると期待される. 実際スピン数  $N = 20$  の厳密対角化を行なうと  $1/2, 1/4$  に対応するプラトーが見られた. また, 実験では  $1/4, 1/8$  の磁化プラトーが観測されている. 上に述べた考察は, 他にも  $1/2, 1/10, 1/16$  の可能性を示唆しており,  $1/2$  のプラトーはより強い磁場中で,  $1/10, 1/16$  のプラトーはより低温でより品質の良いサンプルを使うことによって実験的に観測されることが期待される.

また, 最近の我々の研究により, トリプレット間の相互作用には強い方向依存性があることが明らかになった. この方向依存性を考慮すると上記の磁化の値以外でも  $1/3$  のプラトーが存在する. また,  $1/3$  と  $1/4$  の磁化ではこの方向依存性のためユニットセルが正方形とは異なっており, トリプレット励起の超格子構造としてストライプ構造がしていることが予想される [5].

## 5 まとめ

$\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  は 2 次元ハイゼンベルク模型であらわせる系であり, スピン間の交換相互作用の大きさは  $J = 100 \text{ K}$ ,  $J' = 68 \text{ K}$  となっている. このことより, この物質の基底状態はダイマースィングレット状態となっており, 量子転移点の近傍にある物質であることがわかった. この系ではトリプレット励起の局在性が強く, 適当な磁化でトリプレットの結晶化がおこり, 磁化プラトーが実現していることなど量子スピン系の多彩な現象が展開される典型例になっており, 実験, 理論の一層の進展が期待される.

## 参考文献

- [1] H. Kageyama, K. Yoshimura, R. Stern, N.V. Mushnikov, K. Onizuka, M.Kato, K. Kosuge, C.P. Slichter, T. Goto and Y. Ueda, Phys. Rev. Lett. **82** (1999), 3168.
- [2] B.S. Shastry and B. Sutherland, Physica B **108** (1981), 1069.
- [3] S. Miyahara and K. Ueda, Phys. Rev. Lett. **82** (1999), 3701.
- [4] K. Ueda and S. Miyahara, J. Phys.:Condens. Matter **11** (1999), L175.
- [5] S. Miyahara and K. Ueda, submitted to Phys. Rev. B.