

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 29 日現在

機関番号：32660

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23540395

研究課題名(和文)スピギャップが観測されているスピン1/2カゴメ格子系の理論的研究

研究課題名(英文)Theoretical study on spin-1/2 antiferromagnetic kagome systems with a spin gap

研究代表者

福元 好志 (Fukamoto, Yoshiyuki)

東京理科大学・理工学部・准教授

研究者番号：00318213

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,300,000円、(間接経費) 690,000円

研究成果の概要(和文)：フッ化ルビジウム銅スズ $\text{Rb}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ (歪んだカゴメ格子)とスピンボール $\text{Mo}_72\text{V}_{30}$, W_72V_{30} (大きさ1/2のスピン30個が20-12面体の頂点上に配置されたクラスター磁性体)の理論的研究を行った。前者については、高分解能中性子散乱実験により得られた低励起エネルギー Spektrの各ブランチの起源を特定し、Dzyaloshinskii-Moriya相互作用の重要性を指摘した。後者については、 $\text{Mo}_72\text{V}_{30}$ の小さなスピギャップが歪みによるものであることを示し、そして、 W_72V_{30} でギャップ内シングレット状態を観測する手段としてラマン散乱実験で有効であることを示した。

研究成果の概要(英文)：A deformed kagome system $\text{Rb}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ and spin balls $\text{Mo}_72\text{V}_{30}$ and W_72V_{30} , which are icosidodecahedrons with quantum spins on their vertices, are studied theoretically. For $\text{Rb}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$, origin of each of branches in the low-energy spectrum obtained by high-resolution inelastic neutron scattering experiments is specified, and effects of Dzyaloshinskii-Moriya interactions are clarified. For $\text{Mo}_72\text{V}_{30}$, it is discussed that the small spin gap can be ascribed to the deformation with the D_{5h} symmetry. For W_72V_{30} , it is possible to observe low-energy singlet states within the spin gap by Raman scattering experiments.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード：磁性

1. 研究開始当初の背景

スピン 1/2 カゴメ格子反強磁性体の基底状態に関して様々な理論的予想 (Resonating Valence Bond (RVB) 状態, Valence Bond Solid (VBS) 状態, 等々) があり, この問題を実験的に研究するため物質合成の努力がなされてきた。理論的には非磁性基底状態が期待されるものの, これまで合成されたカゴメ格子系はほとんど全て低温で磁気転移する。フラストレーションの強い系において基底状態は相互作用の微妙なバランスにより決定されるが, 現実には小さいながらも必ず存在する 3 次元性, 長距離相互作用, Dzyaloshinskii-Moriya (DM) 相互作用などの摂動が磁気秩序をもたらすと考えられる。

一方, 数少ないながら非磁性基底状態を持つスピン 1/2 カゴメ関連物質も知られており, 本研究で取り上げるフッ化ルビジウム銅スズ Rb₂Cu₃SnF₁₂ (歪みを含んだカゴメ格子) とスピンボール Mo₇₂V₃₀, W₇₂V₃₀ (大きさ 1/2 のスピン 30 個が 20-12 面体の頂点上に配置されたクラスター磁性体) はその代表例である。両物質ともに低温帯磁率は熱活性型の温度依存性を示すが, 今のところ, この振る舞いが観測されているスピン 1/2 カゴメ関連物質はこれら 2 つのみである。

これまで, 我々は上記の物質について次のような研究を行ってきた。Rb₂Cu₃SnF₁₂ については, 非弾性中性子散乱実験で得られた励起スペクトルをモデル計算で再現し, pinwheel VBS 基底状態が確かめられ, 交換相互作用, DM 相互作用の値が特定された。スピンボールについては, カゴメ格子系との類似性, 例えばスピンギャップ内に約 80 個のシングレット状態があることを指摘した。また, Mo₇₂V₃₀ の一様帯磁率の実験結果を (理想的な) スピンボールに対する計算結果と比較し, 実験結果のほうがより低温まで磁氣的な自由度が残存しているとの結果を得ている。

2. 研究の目的

本研究はフッ化ルビジウム銅スズとスピンボールに対する研究を更に進展させる為のものである。フッ化ルビジウム銅スズに関する課題としては, 215K で構造相転移があり対称性が低下する (12 個のスピンを含む単位胞から, 48 個のスピンを含む単位胞に変化する) が, 理論解析でこの点を考慮することが挙げられる。また, カゴメ格子系では必然的に DM 相互作用が現れるが, この系の研究を通じ DM 相互作用の効果について知見を得ることも目的の 1 つとなる。スピンボールの課題としては, Mo₇₂V₃₀ での理論と実験の不一致を解消することである。もう 1 つの系 W₇₂V₃₀ について, 理想的なスピンボールに近いという報告があり, この物質で低励起一重項状態の観測可能性を追求する。

3. 研究の方法

フッ化ルビジウム銅スズはダイマー結合系であり, 級数展開の方法が主要な方法となる。級数展開の遂行が難しい物理量については, 有限系での厳密対角化法を用いる。スピンボール Mo₇₂V₃₀, W₇₂V₃₀ は, 大きさ 1/2 のスピン 30 個からなり, ランチョス法による計算が可能である。熱力学量の計算では, ランチョス法とサンプリングを組み合わせる状態密度を計算する手法があり, それを用いる。

4. 研究成果

フッ化ルビジウム銅スズは大型単結晶の育成が可能で, 非弾性中性子散乱実験により三重項励起スペクトルの測定が行われ, 理論計算との比較がなされていたが, 今回, 更に分解能を向上させた実験が実施され, いくつかの新たなモードが見えた。以前の解析に用いたハミルトニアンに加え, 磁氣的ユニットセルを拡大する摂動を導入することによって新たなモードが自然に説明されることが明らかになった。

また, フッ化ルビジウム銅スズに対して, c 軸方向磁場のもと, 非弾性中性子散乱実験によって磁場中スピンギャップの測定が行われ, その磁場依存性にアップターンが見られることが報告された。この起源として DM 相互作用とスタグガードゼーマン項が考えられるが, 我々はまず CuF 八面体の傾きに由来するスタグガードゼーマン項の定式化を行い, この項が非常に大きいことを指摘した。そして, 厳密対角化法でスピンギャップの磁場依存性を計算し, DM 相互作用の面内成分とスタグガードゼーマン項が協調してアップターンが現れることを示した。この解析を通じて, DM 相互作用の面垂直成分 dz の符号がスピンギャップの振舞いに対して非常に重要であることがわかってきた。古典系では, 面内スピン構造のカイラリティと面垂直方向の弱強磁性の有無が dz の符号に支配されていることが知られている。これに対してスピンギャップを持つ量子系では, 今回の厳密対角化計算によって, dz の符号に応じてスピンギャップにアップターンがでる場合とギャップが閉じる場合があることが示唆され, これは大きな驚きであった。

スピンボール Mo₇₂V₃₀ のスピンギャップは, 理想的なスピンボール (対称性 1h) の計算結果と比べ非常に小さい。Mo₇₂V₃₀ の対称性は厳密には 1h ではなく D_{5h} であり, 空間的歪みを含んでいる。この歪みを考慮した模型に対して基底状態相図を作成し, 歪みはフェリ磁性相を安定化することを見出した。Mo₇₂V₃₀ の基底状態は非磁性であるが, それは相図中, フェリ磁性相に近接した位置にあり, その結果スピンギャップが小さくなっていると解釈できる。更に, 帯磁率の実験データを定量的に再現する相互作用パラメータを見出した。

もう 1 つスピンボール W₇₂V₃₀ について,

一様帯磁率の理論解析から対称性は I_h とみなせるとの報告が J. Schnack によりなされていた。我々もこの系について一連の計算を行った。W72V30 に対する模型のゼロ磁場比熱は 3 ピーク構造 (ピーク温度は 2, 6, 80K) を持つ。スピンギャップ ($=19.2T=25.1K$) を超えない範囲の磁場をかけ、比熱への影響を調べたところ、概ね 10K 以下で磁場の影響が生じた。エントロピー計算によると、10K で約 800 個の状態が残存する。ギャップ内シングレット状態の数は約 80 個なので、この 800 個の状態は磁気状態を含み、それによって磁場依存性が生ずる。なお、スピンギャップの半分程度の温度で残存する状態の数をカゴメ格子 (周期境界条件下の 30 サイト系) と比較してみると、スピンボールのほうが多くなっていた。これはカゴメ格子が 3 角形と 6 角形の組み合わせであるのに対し、スピンボールは 3 角形と 5 角形と、奇数個の頂点を持つ図形の組み合わせとなっていることの帰結かもしれない。

スピンボール W72V30 については、ギャップ内シングレット状態に興味を持たれる。今回、ラマンスペクトルの理論的計算を行い、ギャップ内シングレット状態を実験的に直接観測する手法としてラマン散乱が有効であることを理論的に示した。今後、実験的研究の進展が期待される。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 3 件)

[1] K. Matan, Y. Nambu, Y. Zhao, T. J. Sato, Y. Fukumoto, T. Ono, H. Tanaka, C. Broholm, A. Podlesnyak, and G. Ehlers: “Ghost modes and continuum scattering in the dimerized distorted kagome lattice antiferromagnet $Rb_2Cu_3SnF_{12}$ ”, Phys. Rev. B89 (2014) 024414

[2] N. Kunisada and Y. Fukumoto: “Theoretical study of spherical kagomé clusters in Mo_72V_{30} and W_72V_{30} ”, Prog. Theor. Exp. Phys. (2014) 041101

[3] Y. Hirose, A. Oguchi, and Y. Fukumoto: “Infinitely Multiple Steps in Magnetization of Ferro- and Antiferromagnetic Ising Models with Frustration on a Diamond Hierarchical Lattice”, to be published in J. Phys. Soc. Jpn.

[学会発表] (計 9 件)

[1] 国定信隆, 福元好志: “異方的球体カゴメ系 Mo_72V_{30} の小さなスピンギャップとフェリ磁性相”, 日本物理学会第 67 回年次大会, 関西学院大学西宮上ヶ原キャンパス, 2012 年 3 月 25 日

[2] N. Kunisada and Y. Fukumoto: “Spin Gap and Susceptibilities of Spherical Cluster Mo_72V_{30} ”, International Conference on Highly Frustrated Magnetism 2012, McMaster University in

Hamilton, 2012 年 6 月 5 日

[3] T. Ono, T. Amemiya, K. Matan, Y. Nambu, Y. Fukumoto, T. J. Sato, and H. Tanaka: “Ground states and magnetic excitations in a fluoride family of $S=1/2$ kagome-lattice antiferromagnet”, International Conference on Highly Frustrated Magnetism 2012, McMaster University in Hamilton, 2012 年 6 月 7 日

[4] K. Saso, N. Kunisada and Y. Fukumoto: “Effects of Dzyaloshinsky-Moriya Interaction on Magnetic Susceptibilities of the Deformed-Kagome Antiferromagnet $Rb_2Cu_3SnF_{12}$ ”, International Conference on Highly Frustrated Magnetism 2012, McMaster University in Hamilton, 2012 年 6 月 7 日

[5] 南部雄亮, K. Matan, Y. Zhao, 小野俊雄, 福元好志, A. Podlesnyak, G. Ehlers, J.W. Lynn, 佐藤卓, C. Broholm, 田中秀数: “籠目格子反強磁性体 $Rb_2Cu_3SnF_{12}$ における一重項・三重項励起の磁場依存性”, 日本物理学会第 68 回年次大会, 広島大学 東広島キャンパス, 2013 年 3 月 26 日

[6] 国定信隆, 福元好志: “球体カゴメ系 Mo_72V_{30} のラマン散乱スペクトルの理論計算”, 日本物理学会第 68 回年次大会, 広島大学 東広島キャンパス, 2013 年 3 月 29 日

[7] Y. Nambu, K. Matan, Y. Zhao, T. Ono, Y. Fukumoto, A. Podlesnyak, G. Ehlers, J.W. Lynn, T. J. Sato, C. Broholm, and H. Tanaka: “Excitations under fields of the pinwheel valence bond solid state in the Kagome antiferromagnet $Rb_2Cu_3SnF_{12}$ ”, International Conference on Neutron Scattering 2013, Edinburgh International Conference Centre in Edinburgh, 2013 年 7 月 11 日

[8] 国定信隆, 福元好志: “球体カゴメ系 Mo_72V_{30} , W_72V_{20} の磁場中比熱”, 日本物理学会 2013 年秋季大会, 徳島大学常三島キャンパス, 2013 年 9 月 26 日

[9] 千吉良成紀, 福元好志: “転送行列密度行列繰り込み群による一次元量子フラストレート系の計算プログラムの開発”, 日本物理学会 2013 年秋季大会, 徳島大学常三島キャンパス, 2013 年 9 月 28 日

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

出願状況 (計 0 件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

出願年月日:

国内外の別:

取得状況（計 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

福元 好志 (FUKUMOTO, Yoshiyuki)
東京理科大学・理工学部・准教授
研究者番号：00318213

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：