

点<sup>7)</sup>が観測され(本稿で述べた臨界点は上部臨界点に相当する), 下部臨界点を含んだ渦糸相図が理論的に取り扱われるようになった.<sup>27)</sup> この下部臨界点にも  $H^*(T)$  のようなブラッググラス相の境界線に相当する異常が観測されるかどうかは, ブラッググラス相の正当性も含め渦糸相図を理解する上で重要な鍵を握るであろう. このように, 酸素量というパラメータを変化させただけでも多彩な振舞を見せる酸化物高温超伝導体の渦糸相図が, 今後の研究によって系統的に理解されることを期待したい.

以上の結果は, 科学技術振興事業団の戦略的基礎研究推進事業の援助を受けて, 柴田憲治, 佐藤尚徳, 佐々木孝彦の各氏(東北大金研)との共同研究として得られたものであり, ここに感謝いたします.

#### 参考文献

- 1) G. Blatter, *et al.*: *Rev. Mod. Phys.* **66** (1994) 1125.
- 2) G. W. Crabtree and D. R. Nelson: *Phys. Today* **50** (1997) 38.
- 3) 池田隆介: *固体物理* **32** (1997) 369, 459, 637, 811, 955, **33** (1998) 19, 421, 510.
- 4) T. Nishizaki, *et al.*: *Phys. Rev. B* **58** (1998) 11169.
- 5) T. Nishizaki, *et al.*: *Phys. Rev. B* **61** (2000) 3649.
- 6) T. Nishizaki, *et al.*: *J. Low Temp. Phys.* **117** (1999) 1375.
- 7) T. Nishizaki, *et al.*: *Proc. M<sup>2</sup>S-HTSC-VI, Houston, 2000*, *Physica C* に出版予定.
- 8) H. Safar, *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **70** (1993) 3800.
- 9) A. Schilling, *et al.*: *Nature (London)* **382** (1996) 791. A. Junod, *et al.*: *Physica C* **275** (1997) 245.
- 10) R. Liang, *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **76** (1996) 835. U. Welp, *et al.*: *ibid.* **4809**. T. Nishizaki, *et al.*: *J. Low Temp. Phys.* **105** (1996) 1183.
- 11) E. Zeldov, *et al.*: *Nature (London)* **375** (1995) 373.
- 12) B. Khaykovich, *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **76** (1996) 2555.
- 13) T. Naito, *et al.*: *Czech. J. Phys.* **46** (1996) 1585. T. Sasagawa, *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **80** (1998) 4297.
- 14) X. Hu, *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **79** (1997) 3498; *Phys. Rev. B* **58** (1998) 3438. 胡 曉: *日本物理学会誌* **54** (1999) 734.
- 15) 本稿以前のピーク効果の解釈をまとめた解説として, 小林典男:『高温超伝導の科学』立木 昌, 藤田敏三編(裳華房, 1999) p. 291, 松下照男:『磁束ピンニングと電磁現象』(産業図書, 1994) p. 322.
- 16) M. P. A. Fisher: *Phys. Rev. Lett.* **62** (1989) 1415. D. S. Fisher, *et al.*: *Phys. Rev. B* **43** (1991) 130.
- 17) R. H. Koch, *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **63** (1989) 1511.
- 18) 安藤陽一: *日本物理学会誌* **48**(1993) 974.
- 19) T. Giamarchi and P. Le Doussal: *Phys. Rev. Lett.* **72** (1994) 1530; *Phys. Rev. B* **52** (1995) 1242, **55** (1997) 6577.
- 20) 関連する参考文献を多く含むレビューとして, T. Nattermann and S. Scheidl: *Adv. Phys.* に掲載予定 (cond-mat/0003052).
- 21) D. Ertas and D. R. Nelson: *Physica C* **272** (1996) 79. J. Kierfeld: *Physica C* **300** (1998) 171.
- 22) R. Ikeda: *J. Phys. Soc. Jpn.* **65** (1996) 3998.
- 23) R. Cubitt, *et al.*: *Nature (London)* **365** (1993) 407.
- 24) M. B. Gaifullin, *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **84** (2000) 2945.
- 25) Y. Nonomura and X. Hu: cond-mat/0002263.
- 26) T. K. Worthington, *et al.*: *Phys. Rev. B* **46** (1992) 11854.
- 27) R. Ikeda: *J. Phys. Soc. Jpn.* **69** (2000) 559.

(2000年5月18日原稿受付)

## 最近の研究から

# 厳密なダイマー基底状態をもつ新しい二次元銅酸化物 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$

陰山 洋  
宮原 慎

〈東京大学物性研究所物質設計評価施設 277-8581 柏市柏の葉 5-1-5 e-mail: kage@issp.u-tokyo.ac.jp〉

〈東京大学物性研究所物性理論研究部門 277-8581 柏市柏の葉 5-1-5 e-mail: miyahara@issp.u-tokyo.ac.jp〉

強相関物理学で現在最もホットな話題の一つは, 低次元量子スピン系において顕著な量子効果により基底一重項状態が実現されるスピギャップ系の研究である. ここでは, 最近我が国のグループが中心となって研究が行われているスピギャップ物質  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  について紹介する. スピン 1/2 のダイマーが二次元面内で直交した構造は, 驚くべきことに20年前に Shastry と Sutherland によって考察された理論模型と等価であった. ダイマーが直交することに起因する, 厳密な基底状態やトリプレット励起の著しい局在性などの興味深い現象を理論, 実験両面から解説する.

## 1. はじめに

低次元量子スピン系とは 1/2, 1 などの小さなスピン量子数をもつ磁性イオンを低次元格子に並べた系である. そこでは大きな量子揺らぎのために, 古典的に期待されるような長距離秩序状態が抑制され, しばしば不思議な基底状態が現れる. その中でも近年特に話題を集めているのがスピギャップ系と呼ばれる系である. スピギャップ系は絶対零度では非磁性であり, 最低励起状態との間に有限のエネルギーギャップが存在する. この代表例が整数スピンを一次元鎖上に並べたハルデン模型<sup>1)</sup>やスピン 1/2 の一

次元鎖を2本平行に並べた梯子模型<sup>2)</sup>である. これら一連の研究に共通する特徴は理論屋と実験屋が切磋琢磨する関係にある. 机上の理論模型が現実の物質(例えば上述したハルデン系では  $\text{Ni}(\text{C}_2\text{H}_8\text{N}_2)_2\text{NO}_2\text{ClO}_4$  (NENP),<sup>3)</sup> 梯子系では  $\text{SrCu}_2\text{O}_3$ <sup>4)</sup> など)において実現され, 様々な実験結果と理論計算とを比較検討することによってこの系の物理の本質が明らかにされつつある.

ここに紹介する物質  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  は  $\text{Cu}^{2+}$  がスピン 1/2 を有する特異な二次元的スピン構造をとっており, “厳密なダイマー基底状態”をもつスピギャップ系となってい

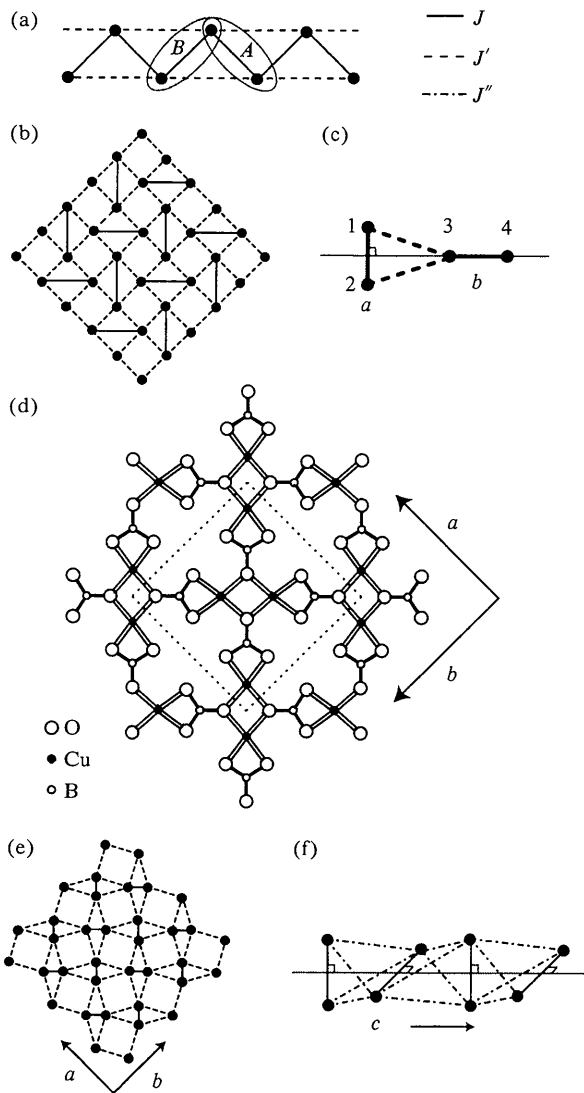


図1 (a) Majumdar-Ghosh 模型 ( $J'/J=0.5$ ). (b) Shastry-Sutherland 模型. (c)  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  における直交ダイマーの基本ユニット. (d)  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  における  $\text{CuBO}_3$  層. (e)  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  の  $c$  面内の  $\text{Cu-Cu}$  ダイマーネットワーク. (f) 一次元直交ダイマー模型.  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  の  $\text{Cu-Cu}$  ダイマーは  $c$  軸方向にこの配列をとる.

ることから、最近大きな関心を集めている。また美しい基底状態のみならず、励起状態にも磁化プラトーが観測されるなど興味深い現象が観測されている。本稿では最近筆者らがこの物質について精力的に行った実験と理論の結果について述べる。

## 2. 理論的背景

$\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  について述べる前に、まず本稿のキーワードである“厳密なダイマー基底状態”について簡単に説明しておこう。実は、厳密なダイマー基底状態を実現する理論模型は少なからず存在する。1960年代後半に Majumdar と Ghosh によって最初に考察されたのが最近接 (n.n.) 相互作用  $J$ 、次近接 (n.n.n.) 相互作用  $J'$  (ともに反強磁性的とする) からなる  $S=1/2$  ジグザグ鎖ハイゼンベルク模型

(図1(a)) である。<sup>5)</sup> この模型は以下のハミルトニアンで表される。

$$\mathcal{H} = J \sum_{\text{n.n.}} s_i \cdot s_j + J' \sum_{\text{n.n.n.}} s_i \cdot s_j. \quad (1)$$

ここで図1(a)の  $A$  または  $B$  のような最近接位置のダイマーを基調とし、ダイマー—重項を

$$|s\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle). \quad (2)$$

そして三重項を

$$|t_1\rangle = |\uparrow\uparrow\rangle, \quad (3)$$

$$|t_0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle), \quad (4)$$

$$|t_{-1}\rangle = |\downarrow\downarrow\rangle \quad (5)$$

と表記しよう。このとき、 $J'$  と  $J$  の比がある適当な領域では系は非磁性の基底状態をとり、スピングャップをもつことがわかっているが、特に  $J'$  の大きさが  $J$  のちょうど半分の際に限り、ダイマー—重項 (式 (2)) の直積で書いた波動関数

$$|\Psi\rangle = \prod_a |s\rangle_a \quad (6)$$

が厳密な固有関数になり、固有エネルギーも厳密に  $-(3/8)NJ$  と決定される ( $N$  はスピンの総数)。ここで式 (6) 中の  $a$  は図1(a)の  $A$  (または  $B$ ) の向きのダイマーを表す。なお基底状態は  $A$  の向きのダイマーの組合せか  $B$  の向きの組合せを選ぶかによって二重に縮退している。 $J'/J=0.5$  のときの模型は発見者にちなんで Majumdar-Ghosh 模型と呼ばれる。これは一見単純なモデルであるが、その厳密性を満足させるには上記の厳格な条件が要請されるために、モデル物質を現実に見つけることは不可能であろう。

一方、1980年代はじめに B. S. Shastry と B. Sutherland は図1(b)で示すような二次元正方格子に規則的に対角線を入れた模型を調べた。<sup>6)</sup> ここで実線にあたる相互作用を  $J$ 、点線を  $J'$  とすると、やはりハミルトニアンは式 (1) で記述される。(ただし、式中の n.n. と n.n.n. は入れかわる)。このモデルに対して式 (6) の波動関数 ( $a$  は図1(b)中の  $J$  上のボンドを表す) は  $J'/J$  が十分小さい限り (後述するように  $J'/J < 0.7$  ならば) 厳密な基底状態であることが示された。ただし、この場合は Majumdar-Ghosh 模型と異なり、ダイマーは一義的に決まるために基底状態に縮退がない。

式 (6) が厳密であることは、図1(c)のような2組のボンドで一重項を組んだ状態を考え、 $J'$  の項を作用させると、

$$J'(s_1 + s_2) \cdot s_3 |s\rangle_a |s\rangle_b = 0 \quad (7)$$

になることから証明できる。式 (7) が成り立つことは以下のような対称性の議論から理解することができる。図1(c)で  $b$  のダイマーを含む軸に対する反転対称を考えると、

ハミルトニアンが対称であるのに対し、 $a$  ボンドの一重項は奇のパリティをもつ。よって、 $J'(s_1+s_2) \cdot s_3$  を一重項状態に作用させると、その行列要素は0になる。このようにダイマーの直交性(より正確に言えばダイマーの垂直二等分線上に隣のダイマーがあること)が厳密な基底状態を生み出すのに本質的であることを強調したい。Majumdar-Ghosh 模型と違って、Shastry-Sutherland 模型は  $J'$  と  $J$  が任意であっても ( $J'/J$  が小さい限り) 基底状態の厳密性は常に満たされる。しかし、そもそも正方格子に対角線を入れた図 1(b) の格子はいかにも作為的であり、机上の理論でしかないように見える。

### 3. $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ におけるスピングャップ

ところが驚くべきことに Shastry, Sutherland の理論から遅れること約20年、自然はこの理論模型を  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  によって、しかもはるかに器用に実現したのである。結晶構造を簡単に説明しよう。この物質が初めて合成されたのは1991年であるが、磁気的性質について調べられたのはここ2, 3年のことである。<sup>7)</sup> 空間群は  $I4_2m$  の正方晶で、 $\text{CuBO}_3$  層と Sr 層が  $c$  軸方向に交互に積層した層状化合物である。磁性イオン ( $S=1/2$ ) の  $\text{Cu}^{2+}$  を含む  $\text{CuBO}_3$  層(図 1(d)) では、 $\text{CuO}_4$  四角形ユニット 2 個が綾共有してダイマーを形成する。これらのダイマーは  $\text{BO}_3$  を介しながら面内で直交してつながっている。図 1(d) において  $\text{Cu}^{2+}$  のみを抜き出したのが図 1(e) である。図 1(b) と (e) を比べてみてすぐ気づくのは、図 (e) において  $J$  ボンドである実線を長くしていくと図 (b) の格子に変換できることである。すなわちこれら二つの格子はトポロジカルに等価である。図 (b) の Shastry-Sutherland 格子において(直感的なイメージとして) 距離がより長い実線の  $J$  ボンドが点線の  $J'$  ボンドよりも強くなければならないというのは不自然である。<sup>8)</sup> ところが、 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  ではダイマー内の距離は  $2.905 \text{ \AA}$ 、ダイマー間のそれは  $5.132 \text{ \AA}$  であるから、 $J > J'$  という条件をより“自然”に表しているように見える(これは最近来日した Shastry が語っていたことである)。

さて  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  が実際にスピングャップ物質であることは帯磁率の温度変化の実験で最初に明らかとなった。<sup>7)</sup> 図 2 の実線は単結晶を用いて測定した帯磁率の温度依存性である。150K 以上の高温領域は  $S=1/2$  のキュリー・ワイス則によく合い、ワイス温度は  $-102.5 \text{ K}$  で反強磁性的相関があることがわかる。ところが温度をさげてくると、15K 付近で帯磁率は極大をとった後、絶対零度でゼロに向かって急激に減少する。これはスピングャップ系に特有の振舞である。スピングャップの大きさ(基底一重項と最低励起三重項状態とのエネルギー差)は、低温の帯磁率の振舞を熱活性型の温度変化を仮定してフィッティングするこ

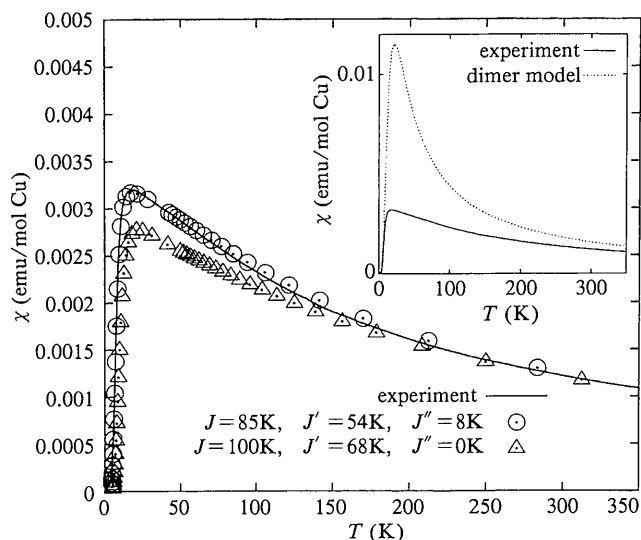


図2 帯磁率の温度依存性。実線は実験結果を、○は  $J=85 \text{ K}$ ,  $J'=54 \text{ K}$ ,  $J''=8 \text{ K}$  の計算結果を、△は  $J=100 \text{ K}$ ,  $J'=68 \text{ K}$ ,  $J''=0 \text{ K}$  の計算結果を表す。挿入図はダイマーモデルと実験との比較を示す。

とによって  $J=34 \text{ K}$  が得られた。<sup>9)</sup>  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  がスピングャップ物質であること、ギャップの大きさがこの程度の値であることは中性子散乱,<sup>10)</sup> ESR,<sup>11)</sup> 比熱,<sup>12)</sup>  $\text{Cu-NMR}$ <sup>13)</sup> などからも明らかとなっている。

上に述べた帯磁率測定を行った当初、実験を行った陰山らは Shastry-Sutherland 模型の存在について知らなかった。そこでまず  $J'$  を無視し  $J$  のみを考慮した孤立ダイマー模型 ( $J$  が唯一のパラメータで  $J=J'$ ) と比較することから始めた。<sup>7)</sup> もしこのモデルで実験データを再現できるのであればこの物質の磁性はつまらないものである。ところが、図 2 の挿入図の点線で示したように実験データと比べて大きく上方にずれていることがわかる(ここではスピングャップの大きさが  $34 \text{ K}$  になるように  $J=34 \text{ K}$  とした)。このことから、 $J'$  の寄与は大きく、したがってこの物質の磁性を理解するためには  $J$  と  $J'$  をあらわに考慮した二次元の理論が必要であるが、これは化学屋が解析できる範囲を超えていると思われた。

宮原らはこの実験結果に興味を示し理論的解釈を試みた結果、すぐさま厳密なダイマー基底状態をもつこと、そして Shastry-Sutherland 格子と等価であることに気づいた。<sup>14)</sup> さらに、 $J$  と  $\theta$  を  $J$  と  $J'$  の関数として表し、実験で得られた値 ( $J=30 \text{ K}$ ,  $\theta=-102.5 \text{ K}$ <sup>15)</sup>) を使うことにより、 $J=100 \text{ K}$ ,  $J'=68 \text{ K}$  と見積もった。これらの交換相互作用のパラメータを用いた16スピンの厳密対角化によって帯磁率の実験データをほぼ再現することができた(図 2)。

ところで、 $\text{CuBO}_3$  層は  $c$  軸方向に90度ずつ回転しながら積層しているため、図 1(f) に示すようにダイマーは  $c$  軸方向にみてもやはり直交しながらつながっている。よって面間のダイマー間相互作用を  $J''$  とすると ( $J > J''$  ならば)、

図 1(f) の格子もダイマーの直交性からやはり厳密性が満たされる。三次元性を考慮した  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  格子でも厳密な基底状態が実現しているのである。<sup>16)</sup> 自然はなんと偉大なことであろうか！ なお最近では、面間の効果も考慮して帯磁率が計算されている。図 2 に示すように  $J=85\text{K}$ ,  $J'=54\text{K}$ ,  $J''=8\text{K}$  とするとほぼ完璧に実験データが再現される。<sup>17)</sup>

また、 $J'/J$  をパラメータとする相転移も興味深い。  $J=0$  の場合を考えると、 $J'$  による二次元正方格子に還元される (図 1(b) をみれば明らか)。このとき反強磁性状態が基底状態であり、したがって  $J'/J$  を変化させたときスピングャップ状態から反強磁性状態への相転移が期待できる。<sup>18)</sup> 厳密対格化と変分計算の結果、臨界点は  $(J'/J)_c=0.7$  と決定された。<sup>14, 19, 20)</sup>  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  では面間相互作用を考慮した場合  $J'/J=0.635$  であることから、偶然にも臨界点近傍に位置している。加圧実験などで実際に  $J'/J$  を変えることができれば面白い。

#### 4. 磁化過程

$\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  の特徴の一つに磁化過程において発現するプラトーがある。図 3(a) に示すように、パルス磁場 60T までの実験によって飽和磁化の 1/3, 1/4, 1/8 のところでプラトーが観測されている。<sup>21)</sup> 量子スピン系の磁化プラトーの問題は最近活発に議論されており、本誌でも取り上げられている。<sup>22)</sup>  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  はその具体例の一つである。

宮原らは磁化プラトーに対する理論的考察を行い、三重項励起の局在性が強いことが本質的であることを示した。<sup>14)</sup> ここで三重項励起の局在性について、ダイマー基底 (2)-(5) を用いて考える。基底状態から一つの三重項が励起した状態をとり、 $J \gg J'$  の極限で摂動計算を行う。このときの三重項励起の配置として、図 1(c) の垂直ボンダ  $a$  上に励起がくる場合と、水平ボンダ  $b$  上にくる場合の 2 種類の場合がある。それぞれの場合の行列要素として、前者では

$$\mathcal{H}'_{ab} |t_1\rangle_a |s\rangle_b = \frac{J'}{2} |t_1\rangle_a |t_0\rangle_b - \frac{J'}{2} |t_0\rangle_a |t_1\rangle_b. \quad (8)$$

後者では

$$\mathcal{H}'_{ab} |s\rangle_a |t_m\rangle_b = 0 \quad (m = \pm 1, 0) \quad (9)$$

となる。式 (9) では式 (7) の議論と同様、ダイマーの直交性に起因したパリティの違いにより行列要素が 0 になるため、三重項励起は伝播できない。一方、式 (8) より前者の配置では三重項励起の移動が起こる。しかし、三重項が移動すると後ろに三重項をひきずることになり、三重項の伝播は困難となる。実際には、ダイマーの閉じたループを利用することにより 6 次摂動からホッピングが起こることが

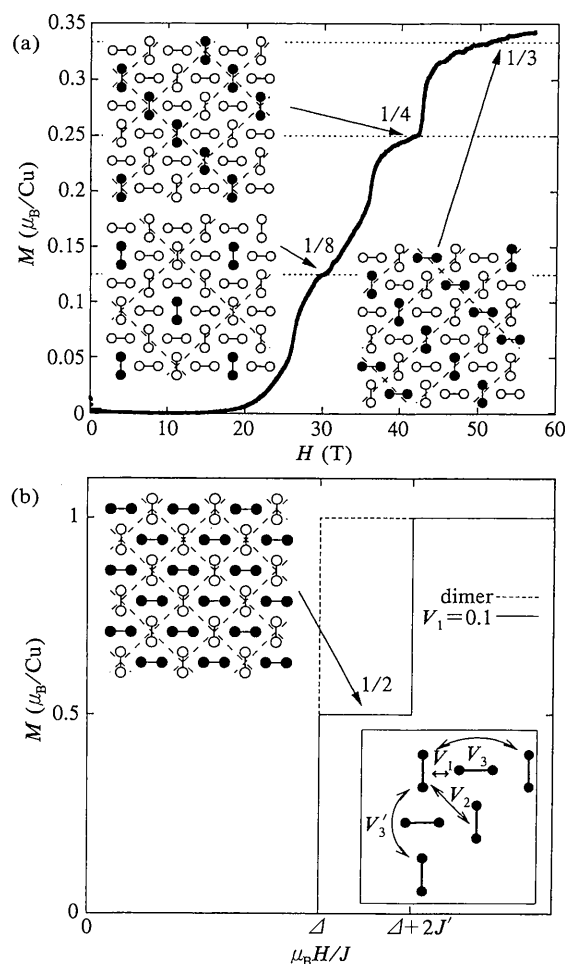


図 3 (a) 0.08K で測定した  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  の磁化曲線と各プラトーでの超格子構造のイメージ。黒いダンベルは三重項を、白いダンベルは一重項を示す。(b) ダイマーモデルと最近接相互作用  $V_1$  をとり入れたモデルでの理論磁化曲線と 1/2 のプラトーでの超格子構造のイメージ。挿入図は三重項間の相互作用  $V_1, V_2, V_3, V_3'$  を示す。

知られている。<sup>23)</sup> このように三重項励起の局在性が強いため、適当な磁場中では三重項励起の結晶化が起こる。磁場を増加すると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。それではどのような磁化で三重項励起の結晶化は起こるのだろうか？

二次元面に垂直に磁場をかけた場合を考え、エネルギーが低い  $|s\rangle$  と  $|t_1\rangle$  のいずれかの状態をとると仮定する。外部磁場がないときは全てのダイマーボンダが  $|s\rangle$  からなる。孤立ダイマー系するとき ( $J' \neq 0$ )、磁化過程は図 3(b) のように磁化 0 から飽和磁化までジャンプする。このように孤立ダイマーモデルでは磁化プラトーは観測されない。

次に  $J' \neq 0$  の場合を見てみよう。 $J'$  の 1 次摂動の範囲を考えると最近接の三重項間に反発力  $V_1 = (1/2)J'$  が働く。この反発力のため図 3(b) のような超格子構造が安定構造となり、磁化 1/2 のところでプラトーが出現する (図 3(b))。トリプレット励起間相互作用が磁化プラトーにおいて重要な役割を果たしていることがわかる。この 1/2 の超

格子構造は  $J'/J$  が大きくなっても安定であると考えられ、 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  でもさらに大きい磁場をかけることで、 $1/2$  プラトーが観測されることが期待される。<sup>14, 23, 24)</sup>

3次摂動までの範囲で考えると次次近接の相互作用には方向依存性があることがわかる。例えば、次次近接の相互作用  $V_3$  では2次摂動の範囲で相互作用が生じるが、 $V_3$  では3次摂動の範囲では相互作用がない(図3(b)挿入図)。また、 $V_3$  は次近接相互作用  $V_2$  よりも大きい。こうした三重項間相互作用の特徴により、磁化  $1/4$  と  $1/3$  でストライプの超格子構造がエネルギー的に安定になる(図3(a))。<sup>23, 25)</sup> 初期の実験では40Tまでの磁化測定が行われており、 $1/3$  のプラトーは観測されていなかった。<sup>7)</sup> この理論結果を受け高磁場実験を行った結果、実際に  $1/3$  プラトーが観測されている。<sup>21)</sup> 今後、磁場中でのNMRや中性子の実験によりこのような超格子構造が直接観測されることが期待される。一方、磁化  $1/8$  でのプラトーではさらに遠距離の三重項間相互作用が効いており、正方形のユニットセルをもつ状態で安定となると予想されている(図3(a))。<sup>23)</sup>

## 5. まとめ

$\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  はShastry-Sutherland模型を実現している物質であり、厳密なダイマー基底状態をもつ。この物質のスピント間交換相互作用は  $J'/J=0.635$  と見積もられ、 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  が量子転移点の近傍にある物質であることがわかった。この系では三重項励起の局在性が強く、適当な磁化で三重項の結晶化が起こり、磁化プラトーが実現している。紙面の関係上ここでは述べなかったが、非弾性中性子散乱<sup>10)</sup>やNMR<sup>13)</sup>からも三重項励起の局在性を示唆する結果が得られている。 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  は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。

この研究の一部は文部省から交付された科研費(奨励A)により行われている。また、宮原は日本学術振興会より特別研究員として援助を受けている。すべての共同研究

者の方々に深い感謝の意を表したい。

## 参考文献

- 1) F. D. M. Haldane: Phys. Lett. A **93** (1983) 464.
- 2) E. Dagotto, J. Riera and D. Scalapino: Phys. Rev. B **45** (1992) 5744.
- 3) J. P. Renard, M. Verdager, L. P. Regnault, W. A. C. Erkelens, J. Rossat-Mignod and W. G. Stirling: Europhys. Lett. **3** (1987) 945.
- 4) M. Azuma, Z. Hiroi, M. Takano, K. Ishida and Y. Kitaoka: Phys. Rev. Lett. **73** (1994) 2626.
- 5) C. K. Majumdar and D. K. Ghosh; J. Math. Phys. **10** (1969) 1399.
- 6) B. S. Shastry and B. Sutherland: Physica B **108** (1981) 1069.
- 7) 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.
- 8) 実際には相互作用の大きさは距離だけの関数ではない。 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  の場合、 $J$  はCu-O-Cuの結合角、 $J'$  は $\text{BO}_3$ を介した超交換相互作用に大きく依存していることに留意されたい。
- 9) H. Kageyama, K. Onizuka, T. Yamauchi, Y. Ueda, S. Hane, H. Mitamura, T. Goto, K. Yoshimura and K. Kosuge: J. Phys. Soc. Jpn. **68** (1999) 1821.
- 10) H. Kageyama, M. Nishi, N. Aso, K. Onizuka, T. Yoshida, K. Nukui, K. Kodama, K. Kakurai and Y. Ueda: Phys. Rev. Lett. **84** (2000) 5876.
- 11) H. Nojiri, H. Kageyama, K. Onizuka, Y. Ueda and M. Motokawa: J. Phys. Soc. Jpn. **68** (1999) 2908.
- 12) H. Kageyama, K. Onizuka, Y. Ueda, M. Nohara, H. Suzuki and N. Takagi: J. Exp. Theor. Phys. **90** (2000) 129.
- 13) M. Takigawa and K. Kodama: 私信.
- 14) S. Miyahara and K. Ueda: Phys. Rev. Lett. **82** (1999) 3701.
- 15) 粉末のサンプルで行われた初期の実験で得られた結果を用いている。スピングャップの大きさは当初30Kと見積もられていた。
- 16) K. Ueda and S. Miyahara: J. Phys. Condens. Matter **11** (1999) L175.
- 17) S. Miyahara and K. Ueda: J. Phys. Soc. Jpn. **69** Suppl. B (2000) 72.
- 18) 最近では、スピングャップ状態と反強磁性状態の間に新たなスピングャップ相の存在を主張する理論もある。A. Koga and N. Kawakami: Phys. Rev. Lett. **84** (2000) 4461.
- 19) Z. Weihong, C. J. Hamer and J. Oitmaa: Phys. Rev. B **60** (1999) 6608.
- 20) E. Müller-Hartmann, R. R. P. Singh, C. Knetter and G. S. Uhring: Phys. Rev. Lett. **84** (2000) 1808.
- 21) K. Onizuka, H. Kageyama, Y. Narumi, K. Kindo, Y. Ueda and T. Goto: J. Phys. Soc. Jpn. **69** (2000) 1016.
- 22) 押川正毅, 戸塚圭介, 山中正則: 日本物理学会誌 **54** (1999) 814.
- 23) S. Miyahara and K. Ueda: Phys. Rev. B **61** (2000) 3417.
- 24) 2個の三重項励起が隣合って存在すると1個の三重項励起のときと比較してホッピングは起こりやすくなる (correlated hopping)。そのため、磁化  $1/2$  ではプラトーが観測されないという理論的予測もある。
- 25) T. Momoi and K. Totsuka: Phys. Rev. B **61** (2000) 3231.

(2000年6月5日原稿受付)