

アズライトと歪んだダイヤモンド型スピン鎖 — 総括 —

岡本清美
(東工大院理工)
太田仁
(神戸大分子フォト)

量子スピン系研究会 (新潟大学, 2013.3.3-4)
2013.3.3

第0回 アズライト研究会

福井工業大学 2004年1月9日

(福井アカデミアホテル)

第1回 城崎町公民館 2005年11月25日

(城崎温泉あさみや旅館)

第2回 福井大学理学部 (遠赤外領域開発研究センター) 2007年12月10日

(白浜荘)

第3回 福井大学理学部 (遠赤外領域開発研究センター) 2009年2月3日

(白浜荘)

第4回 敦賀市西公民館 2010年1月5日

(長兵衛)

第5回 福井大学遠赤外領域開発研究センター 2010年12月10日

(白浜荘)

第6回 福井大学遠赤外領域開発研究センター 2012年2月17日

(白浜荘)

第7回 新潟大学大学院自然科学研究科 2013年3月3日

(富士屋)

Experimental Observation of the 1/3 Magnetization Plateau in the Diamond-Chain Compound $\text{Cu}_3(\text{CO}_3)_2(\text{OH})_2$

アズライト

H. Kikuchi,¹ Y. Fujii,¹ M. Chiba,¹ S. Mitsudo,² T. Idehara,² T. Tonegawa,³ K. Okamoto,⁴
T. Sakai,^{5,*} T. Kuwai,⁶ and H. Ohta⁷

¹*Department of Applied Physics, University of Fukui, Fukui 910-8507, Japan*

²*Research Center for Development of Far-Infrared Region, University of Fukui, Fukui 910-8507, Japan*

³*Department of Mechanical Engineering, Fukui University of Technology, Fukui 910-8505, Japan*

⁴*Department of Physics, Tokyo Institute of Technology, Tokyo 152-8551, Japan*

⁵*Department of Physics, Tohoku University, Sendai 980-8578, Japan*

⁶*Faculty of Science, Toyama University, Toyama 930-8555, Japan*

⁷*Molecular Photoscience Research Center, Kobe University, Kobe 657-8501, Japan*

(Received 28 September 2004; published 6 June 2005)

The magnetic susceptibility, high field magnetization, and specific heat measurements of $\text{Cu}_3(\text{CO}_3)_2 \times (\text{OH})_2$, which is a model substance for the frustrating diamond spin chain model, have been performed using single crystals. Two broad peaks are observed at around 20 and 5 K in both magnetic susceptibility and specific heat results. The magnetization curve has a clear plateau at one third of the saturation magnetization. The experimental results are examined in terms of theoretical expectations based on exact diagonalization and density matrix renormalization group methods. An origin of magnetic anisotropy is also discussed.

Experimental observation of the 1/3 magnetization plateau in the diamond-chain compound Cu-3(CO₃)(₂)(OH)(₂)

著者名: [Kikuchi, H](#) (Kikuchi, H); [Fujii, Y](#) (Fujii, Y); [Chiba, M](#) (Chiba, M); [Mitsudo, S](#) (Mitsudo, S); [Idehara, T](#) (Idehara, T); [Tonegawa, T](#) (Tonegawa, T); [Okamoto, K](#) (Okamoto, K); [Sakai, T](#) (Sakai, T); [Kuwai, T](#) (Kuwai, T); [Ohta, H](#) (Ohta, H)

出版物名: PHYSICAL REVIEW LETTERS 巻: 94 号: 22 記事番号: 227201 DOI: 10.1103/PhysRevLett.94.227201 発行: JUN 10 2005

被引用数: **104** (Web of Science から)

引用文献: **18** [[Related Records](#) を検索]  [引用マップ](#)

抄録: The magnetic susceptibility, high field magnetization, and specific heat measurements of Cu-3(CO₃)(₂)(OH)(₂), which is a model substance for the frustrating diamond spin chain model, have been performed using single crystals. Two broad peaks are observed at around 20 and 5 K in both magnetic susceptibility and specific heat results. The magnetization curve has a clear plateau at one third of the saturation magnetization. The experimental results are examined in terms of theoretical expectations based on exact diagonalization and density matrix renormalization group methods. An origin of magnetic anisotropy is also discussed.

アクセッション番号: WOS:000229700800064

ドキュメントタイプ: Article

言語: English

被引用数: **107**

[引用アラートの作成](#)

この記事は Web of Knowledge で 107 回引用されています。

Qi, Yan. Magnetization plateaus in a doping finite Ising chain. JOURNAL OF MAGNETISM AND MAGNETIC MATERIALS, JAN 2013.

Xin, Zihua. Spin frustration-related behavior of mixed spin diamond chain. JOURNAL OF MAGNETISM AND MAGNETIC MATERIALS, NOV 2012.

Rojas, Onofre. Thermal entanglement in an exactly solvable Ising-XXZ diamond chain structure. PHYSICAL REVIEW A, OCT 22 2012.



ウェブ 画像 もっと見る...

ログイン

kikuchi fujii tonegawa okamoto prl

Scholar

約 113 件 (0.06 秒)

期間指定なし

もしかして: [kikuchi fujii 利根川 okamoto prl](#)ヒント: [日本語のページ](#)だけを検索 (Scholar 設定. で検索対象言語を指定できます)[Experimental Observation of the 1/3 Magnetization Plateau in the Diamond-Chain Compound Cu₃\(CO₃\)₂\(OH\)₂](#)..., S Mitsudo, T Idehara, T **Tonegawa**, K **Okamoto**... - **Physical review** ..., 2005 - APSThe magnetic susceptibility, high field magnetization, and specific heat measurements of Cu₃CO₃2OH₂, which is a model substance for the frustrating diamond spin chain model, have been performed using single crystals. Two broad peaks are observed at around 20 ...引用元 [132](#) 関連記事 全 8 バージョン 引用[Kikuchi et al. Reply](#)..., S Mitsudo, T Idehara, T **Tonegawa**, K **Okamoto**... - **Physical Review Letters**, 2006 - APSH. **Kikuchi**,¹ Y. **Fujii**,¹ M. Chiba,¹ S. Mitsudo,² T. Idehara,² T. **Tonegawa**,³ K. **Okamoto**,⁴ T. Sakai,⁵ T. Kuwai,⁶ and H. Ohta⁷ ¹Department of Applied Physics University of Fukui Fukui 910-8507, Japan ²Research Center for Development of Far-Infrared Region University of ...

引用元 21 関連記事 全 5 バージョン 引用

[Magnetic properties of the S= 1/2 distorted diamond chain at T= 0](#)K **Okamoto**, T **Tonegawa**... - **Journal of Physics: ...**, 2003 - [iopscience.iop.org](#)... K **Okamoto** et al ... Very recently, **Kikuchi** and co-workers [13–15] have reported experimental resultson the magnetic and thermal properties of azurite Cu₃(OH)₂(CO₃)₂. Following their reports, azuritehas a SF ground state and a wide magnetization plateau at M = Ms/3. Thus ...

引用元 67 関連記事 全 11 バージョン 引用

[High-field ESR study of one-dimensional< span>< img height=](#)..., S Takano, S Okubo, M Yoshida, H **Kikuchi** - **Journal of Magnetism and ...**, 2007 - Elsevier[arxiv.org \[PDF\]](#)

アズライト (藍銅鉱) $\text{Cu}_3(\text{CO}_3)_2(\text{OH})_2$

アズライト (azurite , 藍銅鉱) : 古くから知られた鉱物
しばしばマラカイト (malachite , 孔雀石 , $\text{Cu}_2(\text{CO}_3)(\text{OH})_2$) と
混晶をつくっている



from Wikipedia , by Eric Hunt

岩群青(ぐんじょう), マウンテンブルー

岩絵具, アズライトを粉末にしたもの

源氏物語絵巻鈴虫二(左:オリジナル, 右復元模写)



from http://pearl-gilda.blogspot.jp/2010/11/blog-post_987.html

宝石言葉 — 瞑想力, 守護石 — 7月16日

マラカイト (malachite, 孔雀石): これも古くから知られた鉱物

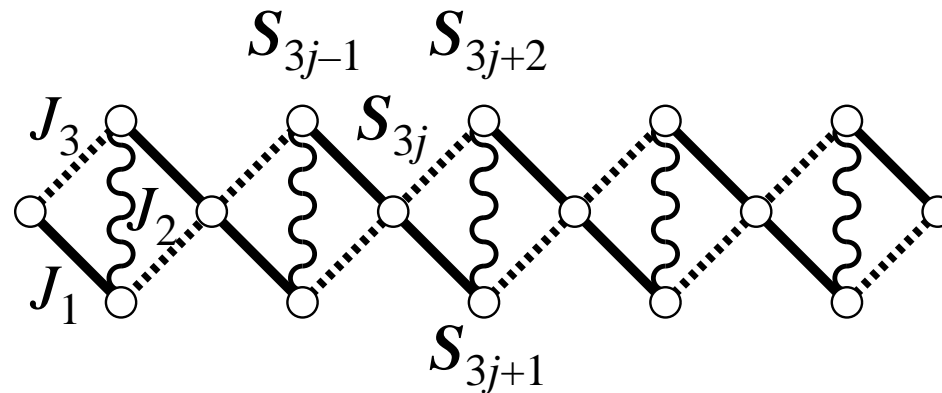
岩緑青(ろくしょう), 青丹(あおに), マウンテングリーン

岩絵具, マラカイトを粉末にしたもの

宝石言葉 — 危険な愛情, 守護石 — 6月25日

歪んだダイヤモンド型スピン鎖

歪んだダイヤモンド型スピン鎖 (J_1, J_2, J_3 は全部反強磁性的)



ダイヤモンド — ♠, ♥, ♦, ♣ から

Takano, Kubo & Sakamoto: JP-C 8 (96) 6405 — $J_1 = J_3$

スピンの量子性, 低次元性, フラストレーション, 三量体性

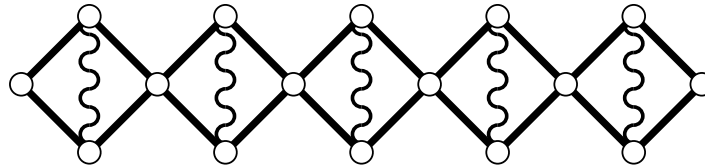
【面白いことがみられそうなキーワード】 + 【それらの相乗効果】

歪んでいないダイヤモンド鎖

$J_3 = J_1$ の場合

Takano, K. Kubo and H. Sakamoto

J. Phys.:Condens. Matter 8 (1996) 6405 .



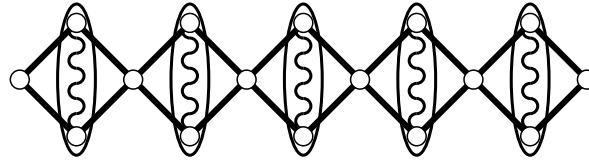
無磁場基底状態

- dimer-monomer $\dots J_2/J_1 > 2$
- tetramer-dimer $\dots 0.909 < J_2/J_1 < 2$
- ferri $\dots J_2/J_1 < 0.909$

($J_2 = 0$ ならフェリ (飽和磁化の1/3) はほぼ自明)

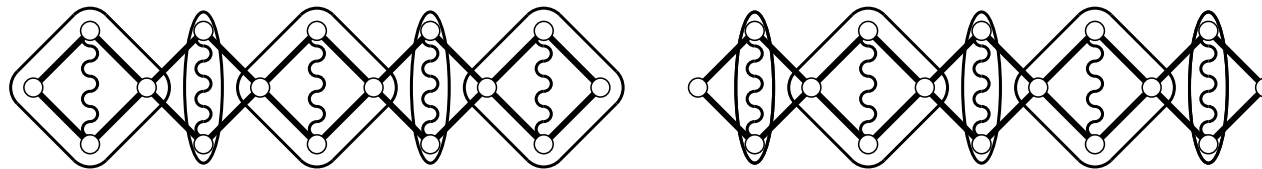
- dimer-monomer $\dots J_2/J_1 > 2$ (2は厳密)

厳密な基底状態(フリースピンのマクロ縮退, $2^{N/3}$ 重)



- tetramer-dimer $\dots 0.909 < J_2/J_1 < 2$ (2は厳密, 0.909は数値計算)

厳密な基底状態(2重縮退 — 並進対称性が破れている)



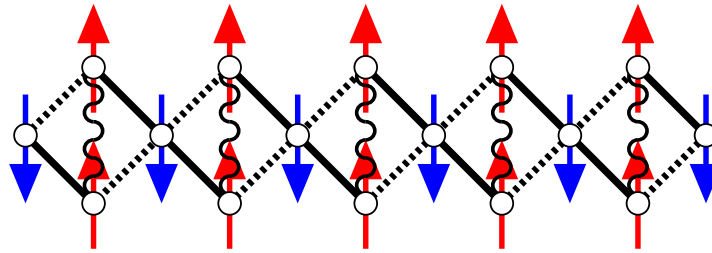
- 有限に広がったパラメーター領域で厳密な基底状態がわかっているところが面白い

(他の例: Shastry-Sutherland モデル(直交ダイマー系)など)

cf. Majumdar-Ghosh モデル($S = 1/2$ 次近接鎖, $J_2 = (1/2)J_1$)

— 特定の点でのみ厳密な基底状態がわかっている

- フェリ相 … $J_2/J_1 < 0.909$

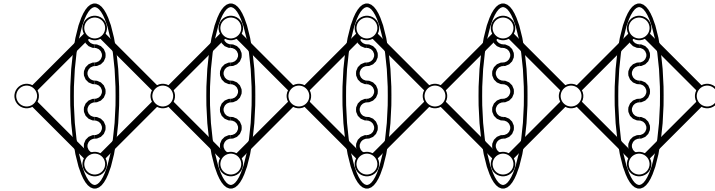


厳密ではない

$M_s/3$ の自発磁化 (M_s : 飽和磁化)

歪み ($J_1 \neq J_3$) の効果

歪み ($J_1 \neq J_3$) の効果



- dimer-monomer (マクロ縮退)

$J_1 \neq J_3$ では dimer を介して monomer (nearly free spin) が弱く結合
摂動による最低次の monomer 間相互作用 — 縮退が解ける

$$J_{\text{eff}} = (J_1 - J_3)^2 / 2J_2 \quad \Longrightarrow \quad \text{TL スピン液体 (SF)}$$

$$J_1 = J_3 \quad \Longrightarrow \quad J_{\text{eff}} = 0 \quad \text{「joint spin」はフリー}$$

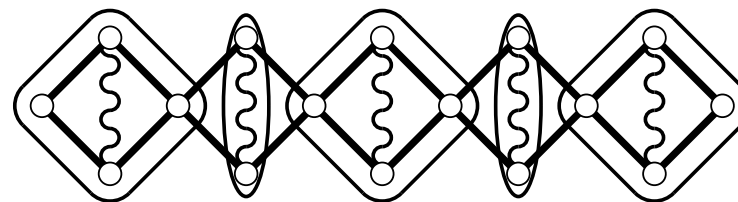
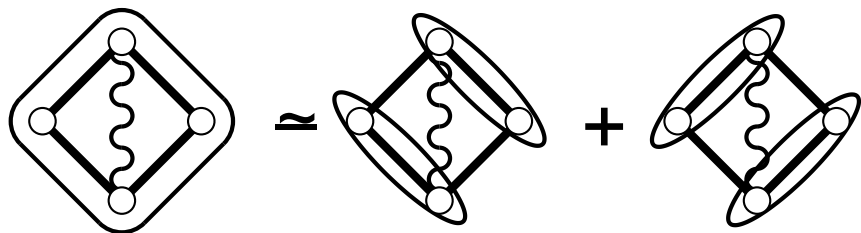
高次摂動 (Honecker & Läuchli: PRB 63 (01) 174407)

$$\frac{J_{\text{eff}}}{J_2} = (\bar{J}_1 - \bar{J}_3)^2 \left\{ \frac{1}{2} + 3(\bar{J}_1 + \bar{J}_3) + 3\bar{J}_1\bar{J}_3 - \frac{(\bar{J}_1 + \bar{J}_3)[107(\bar{J}_1^2 + \bar{J}_3^2) - 406\bar{J}_1\bar{J}_3]}{64} + \dots \right\}$$

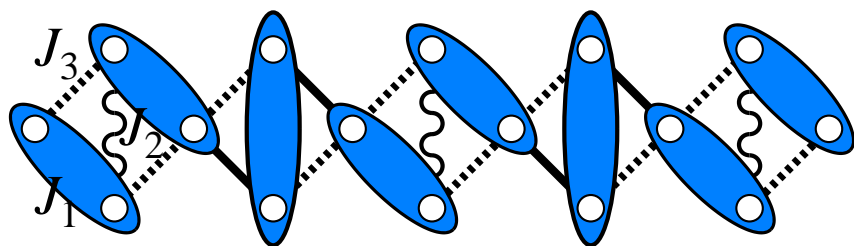
$$\frac{J_{\text{eff}}^{\text{NNN}}}{J_2} = \frac{(\bar{J}_1 + \bar{J}_3)(\bar{J}_1 - \bar{J}_3)^4}{4} + \dots$$

$$\bar{J}_1 \equiv J_1/J_2, \quad \bar{J}_3 \equiv J_3/J_2$$

● tetramer-dimer (2重縮退)



$J_1 > J_3$ — 左辺第1項が主要



逆に見るなら,

$J_1 = J_3$, 点線上に dimer 形成も同資格

両者の共鳴 — tetramer

歪んだダイヤモンド型スピン鎖のパラメーター

$$\tilde{J}_2 \equiv J_2/J_1, \quad \tilde{J}_3 \equiv J_3/J_1$$

truncated (3-spin問題) (マクロ縮退)

普通 (no trimerization) の

$S=1/2$ スピン鎖 (SF)

TD — tetramer-dimer

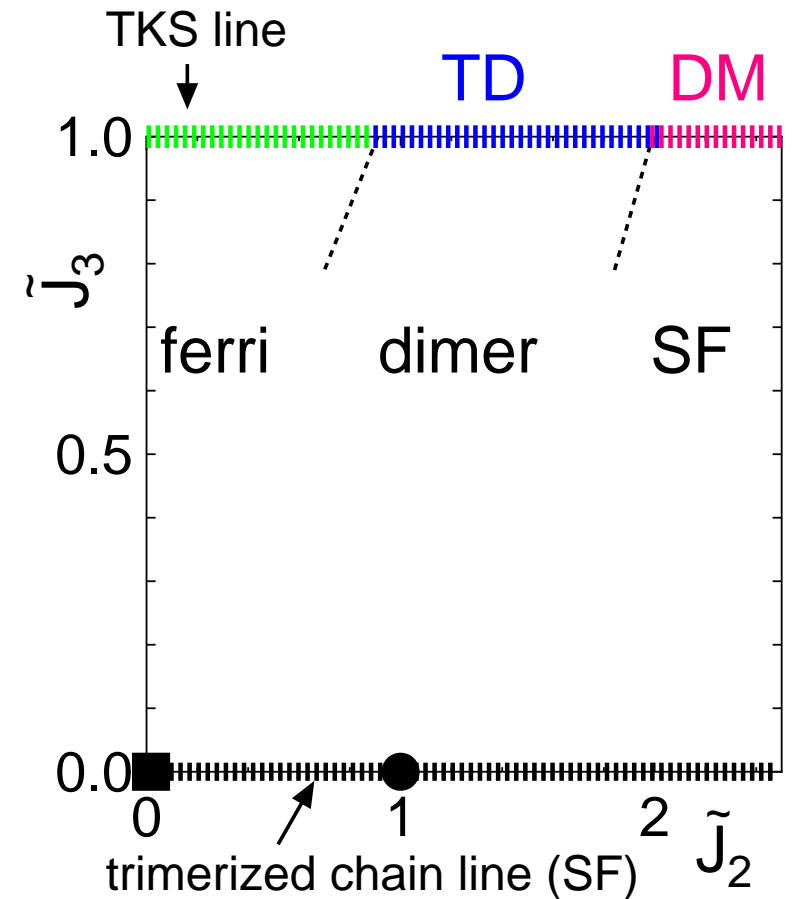
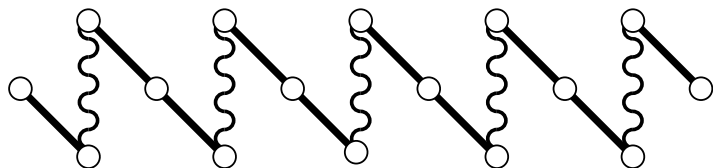
DM — dimer-monomer

TKS — Takano, Kubo, Sakamoto

SF — spin fluid

(Tomonaga-Luttinger 的スピン液体)

$J_3 = 0$ — trimerized chain



歪んだダイヤモンド型スピン鎖の基底状態相図 — 数値計算

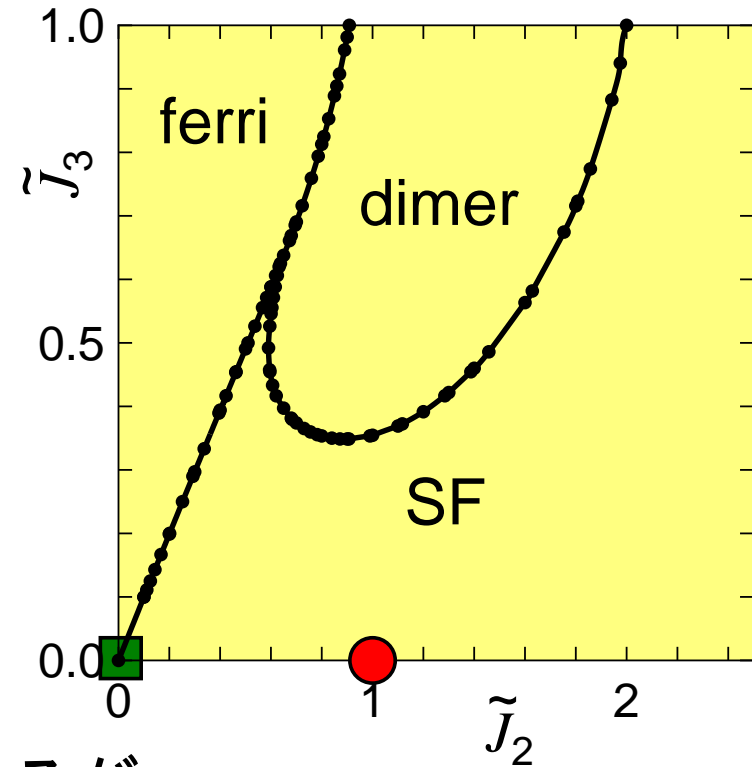
truncated (3-spin 問題)

普通の $S=1/2$ スピン鎖

ferri の境界 — 1次転移

SF-dimer 境界 — BKT 転移

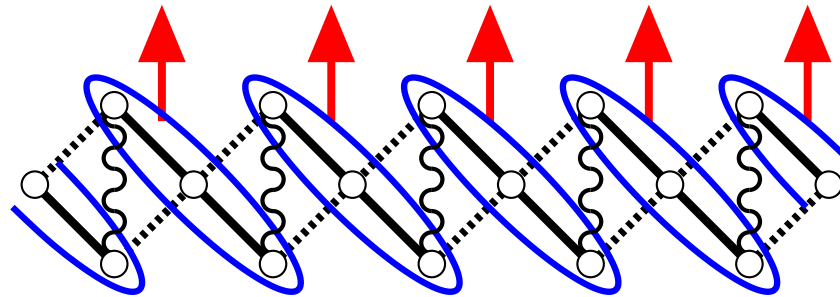
(BKT = Berezinskii-Kosterlitz-Thouless)



このタイプの磁性体はいくつかあるが、
ほとんどは J_2 が小さく基底状態がフェリ
基底状態がSFなのはアズライトのみ？

$$M = M_s/3 \text{ プラトー}$$

$J_2 = J_3 = 0$ 付近 (古典的プラトー)



強い3-スピクラスター性

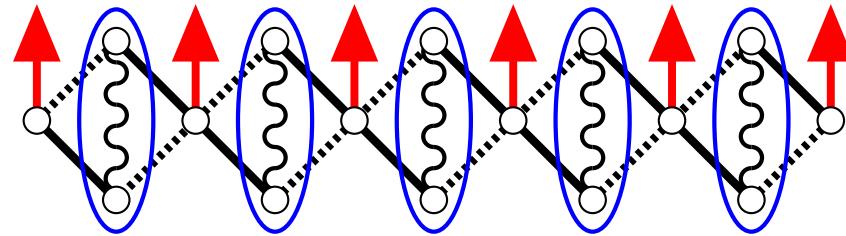
3-スピクラスター $\implies S_{\text{tot}}^z = \pm 3/2, \pm 1/2$

すべての3-スピクラスターが $S_{\text{tot}}^z = 1/2$

$\implies M = M_s/3$ プラトー

無磁場の場合のフェリ基底状態と同じ

$J_2 \rightarrow \infty$ の場合 (量子的プラトー)



singlet dimer+free spin

free spin が磁場方向を向く

$\implies M = M_s/3$ プラトー

2種類の $M = M_s/3$ プラトー

数値計算と相図

twisted boundary condition

+ 数値的対角化

+ レベルスペクトロスコピー

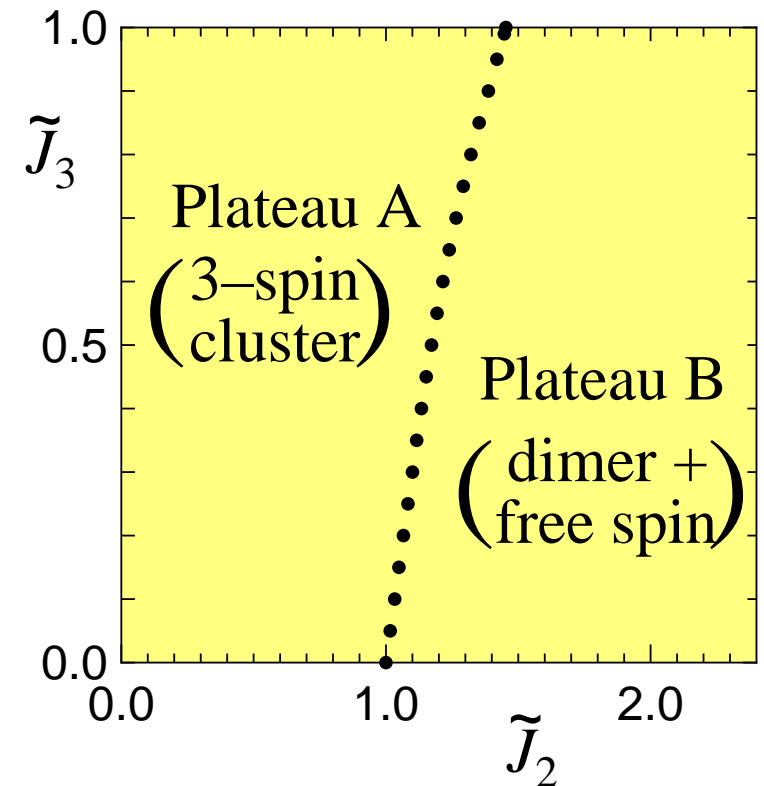
で境界を精度よく決定できる

(Kitazawa, JP-A 30 (97) L285)

境界線上でのみプラトーが消失

転移は2次転移, Gaussian typeで,

臨界指数は連続的に変化



M = M_s/3 プラト-のスピ配置

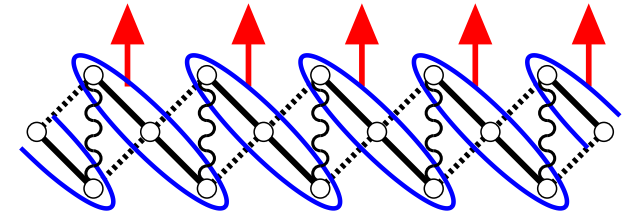
3-spin cluster (プラト-A, 古典的)

S_{tot}^z = 1/2 の最低状態

$$\dots\phi_2 \equiv (1/\sqrt{6})(|\uparrow\uparrow\downarrow\rangle - 2|\uparrow\downarrow\uparrow\rangle + |\uparrow\downarrow\downarrow\rangle)$$

⟨S^z⟩ の並び方は

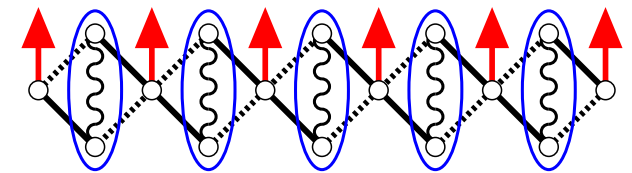
$$\overbrace{\begin{pmatrix} 1 \\ 3 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} -1 \\ 6 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ 3 \end{pmatrix}}^{\phi_2} \overbrace{\begin{pmatrix} 1 \\ 3 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} -1 \\ 6 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ 3 \end{pmatrix}}^{\phi_2} \overbrace{\begin{pmatrix} 1 \\ 3 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} -1 \\ 6 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ 3 \end{pmatrix}}^{\phi_2}$$



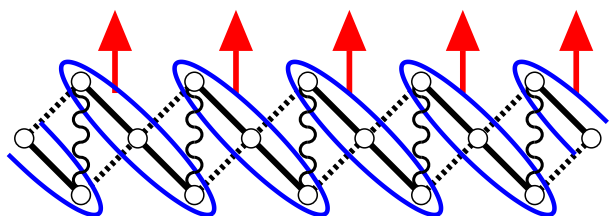
dimer + free spin (プラト-B, 量子的)

⟨S^z⟩ の並び方は

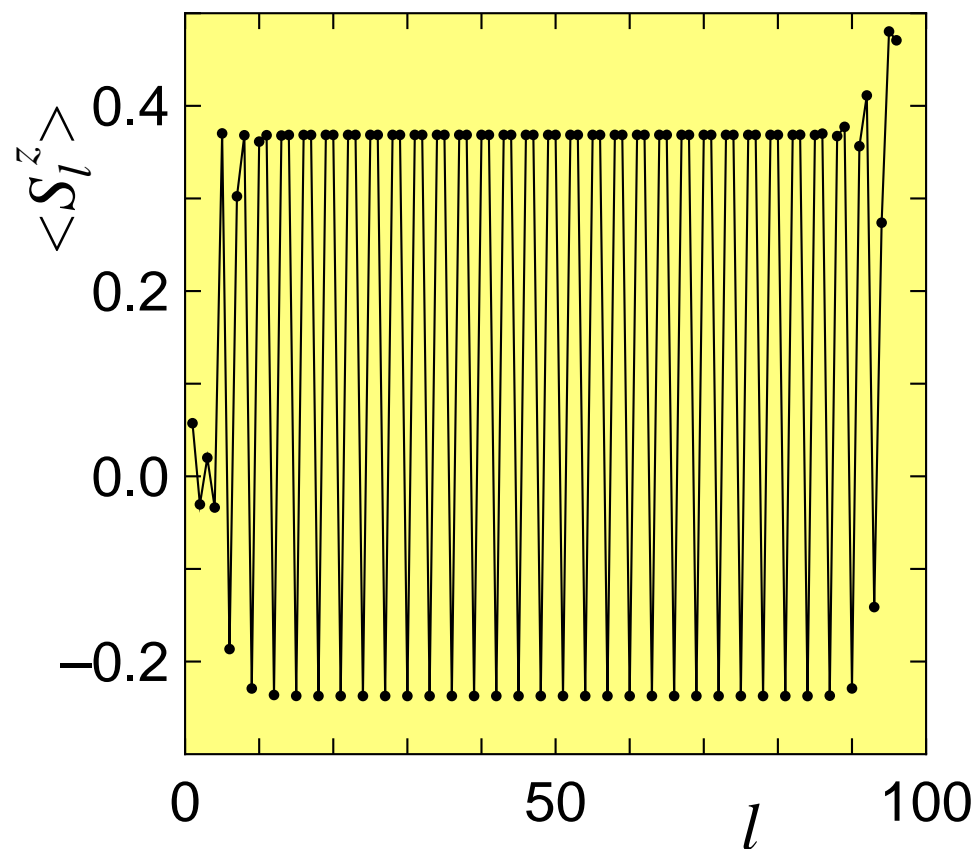
$$\overbrace{(0) \begin{pmatrix} 1 \\ 2 \end{pmatrix} (0) (0)} \overbrace{\begin{pmatrix} 1 \\ 2 \end{pmatrix} (0) (0) \begin{pmatrix} 1 \\ 2 \end{pmatrix} (0) (0)} \overbrace{\begin{pmatrix} 1 \\ 2 \end{pmatrix} (0) (0) \begin{pmatrix} 1 \\ 2 \end{pmatrix} (0)}$$



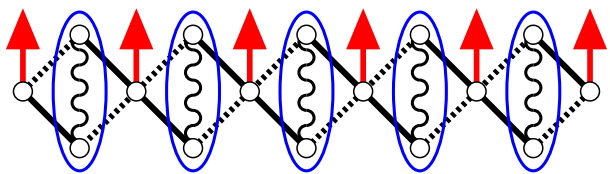
DMRGでスピン配置を見る
 プラトールA (古典的)
 3スピクラスター型



上の描像に対応する $\langle S^z \rangle$
 $\left(\frac{1}{3}\right) \left(-\frac{1}{6}\right) \left(\frac{1}{3}\right) \left(\frac{1}{3}\right) \left(-\frac{1}{6}\right) \left(\frac{1}{3}\right)$
 $(\tilde{J}_2, \tilde{J}_3) = (0.80, 0.55)$



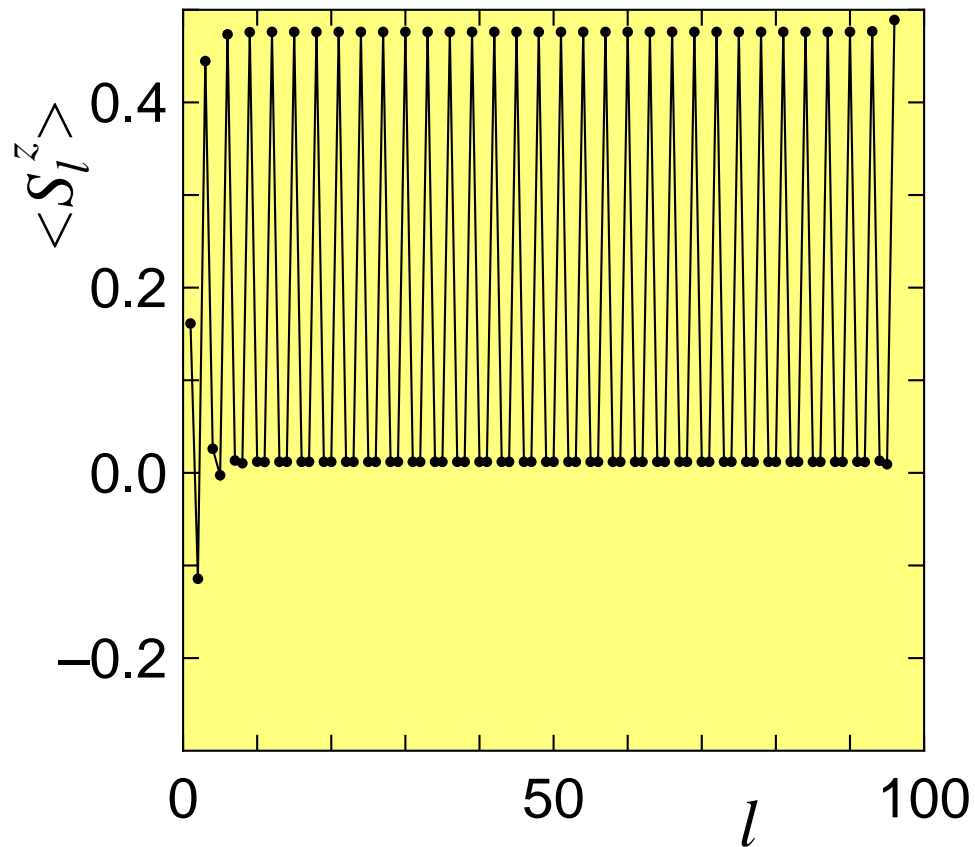
プラトール B (量子的)
 ダイマー + フリースピン型



上の描像に対応する $\langle S^z \rangle$

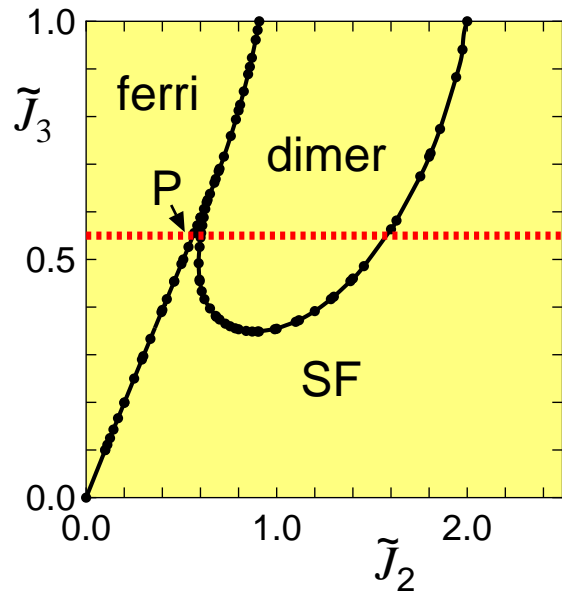
$$(0) \left(\frac{1}{2}\right) (0)(0) \left(\frac{1}{2}\right) (0)$$

$$(\tilde{J}_2, \tilde{J}_3) = (1.50, 0.55)$$

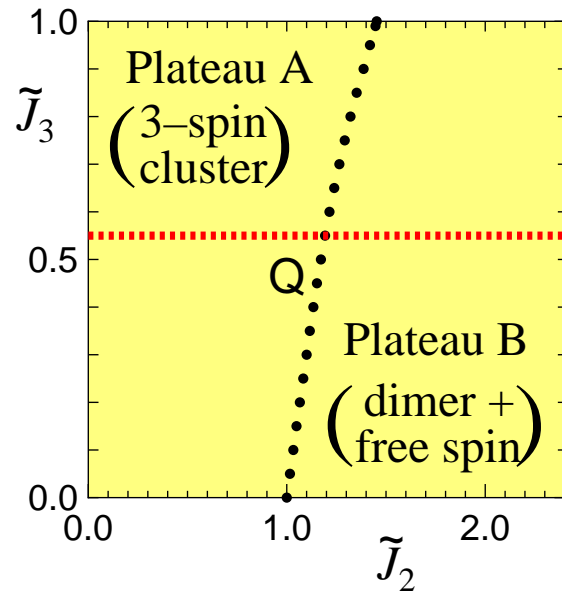


アズライトの $M_s/3$ プラトールはこのタイプ

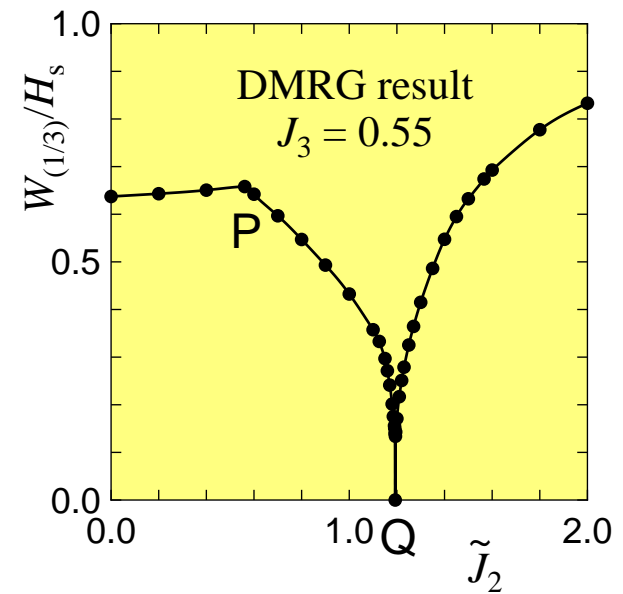
DMRGでプラトー幅を見る



無磁場相図



$M = M_s/3$ 相図



DMRGによる
 $M = M_s/3$ プラトー幅

$$M = (2/3)M_s \text{ プラトール}$$

自発的対称性破れ

3-スピクラスター $\implies S_{\text{tot}}^z = \pm 3/2, \pm 1/2$

3-スピクラスターの単純並びでは $(2/3)M_s$ プラトールは出ない

6スピン周期が必要 \implies 自発的対称性破れ

Oshikawa-Yamanaka-Affleck の必要条件 (PRL 78 (97) 1984)

$(2/3)M_s$ 状態

3-スピクラスターが $S_{\text{tot}}^z = 3/2$ と $S_{\text{tot}}^z = 1/2$ 半数ずつなら OK

$\tilde{J}_2 = \tilde{J}_3 = 0$ の場合

厳密に上の状況．ただし，プラトールにはならない

(2種の3-スピクラスターの配置がバラバラ)

$M = (2/3)M_s$ プラトーの解析的アプローチ — 縮退摂動論

状態の制限と擬スピン

3-スピクラスターの2状態

($S_{\text{tot}}^z = 3/2$ 状態と $S_{\text{tot}}^z = 1/2$ の最低状態)

に空間を制限

擬スピン \vec{T} の $|\uparrow\rangle$ と $|\downarrow\rangle$ で表現

$$|\uparrow\uparrow\uparrow\rangle \Rightarrow |\uparrow\rangle$$

$$\frac{1}{\sqrt{6}} (|\uparrow\uparrow\downarrow\rangle - 2|\uparrow\downarrow\uparrow\rangle + |\downarrow\uparrow\uparrow\rangle) \Rightarrow |\downarrow\rangle$$

擬スピンによる実効ハミルトニアン

クラスター間相互作用を \vec{T} で表現

$$H_{\text{eff}} = J_{\text{eff}} \sum_{\ell} \left\{ \frac{1}{2} \left(T_{\ell}^{+} T_{\ell+1}^{-} + T_{\ell}^{-} T_{\ell+1}^{+} \right) + \Delta_{\text{eff}} T_{\ell}^z T_{\ell+1}^z \right\}$$

$$J_{\text{eff}} = \frac{|J_2 - 4J_3|}{6} \quad \Delta_{\text{eff}} = \frac{1}{6} \frac{\tilde{J}_2 + 8\tilde{J}_3}{|\tilde{J}_2 - 4\tilde{J}_3|}$$

$T = 1/2$ XXZ スピン鎖

擬スピン

もとのモデル

$$\Delta_{\text{eff}} > 1$$

Néel order

プラトーあり

$$\Delta_{\text{eff}} \leq 1$$

spin fluid

プラトーなし

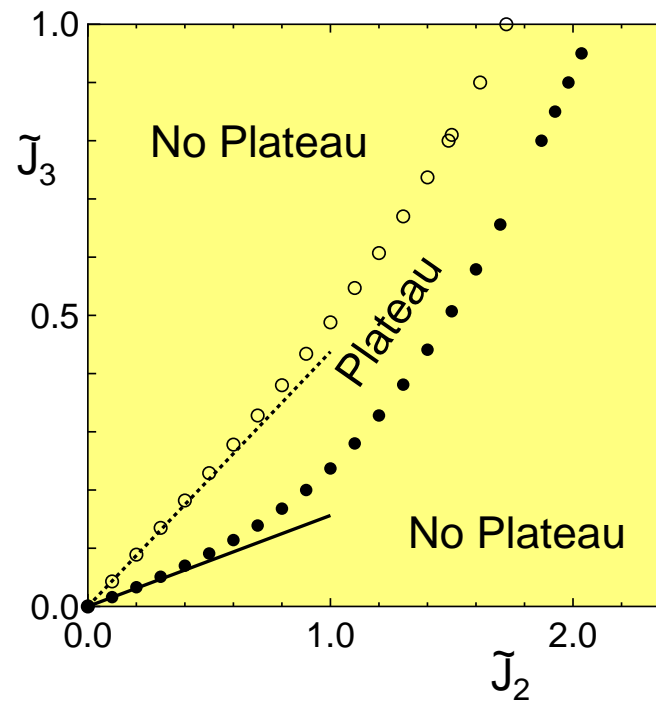
プラトー存在条件

$$\Delta_{\text{eff}} = \frac{1}{6} \frac{\tilde{J}_2 + 8\tilde{J}_3}{|\tilde{J}_2 - 4\tilde{J}_3|} > 1 \quad \implies \quad \frac{5}{32} \tilde{J}_2 < \tilde{J}_3 < \frac{7}{16} \tilde{J}_2$$

$M = (2/3)M_s$ プラトー相図

数值的対角化 + レベルスペクトロスコピー

$(2/3)M_s$ Plateau of the DD Chain



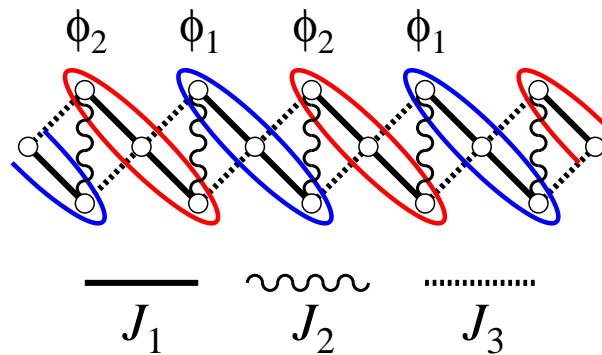
Lines: result by use of the degenerate perturbation theory from (0,0)

(2/3) M_s プラトースのスピンの配置

J_1 で結ばれた3スピン

$$\phi_1 \equiv |\uparrow\uparrow\uparrow\rangle$$

$$\phi_2 \equiv (1/\sqrt{6})(|\uparrow\uparrow\downarrow\rangle - 2|\uparrow\downarrow\uparrow\rangle + |\uparrow\downarrow\downarrow\rangle)$$



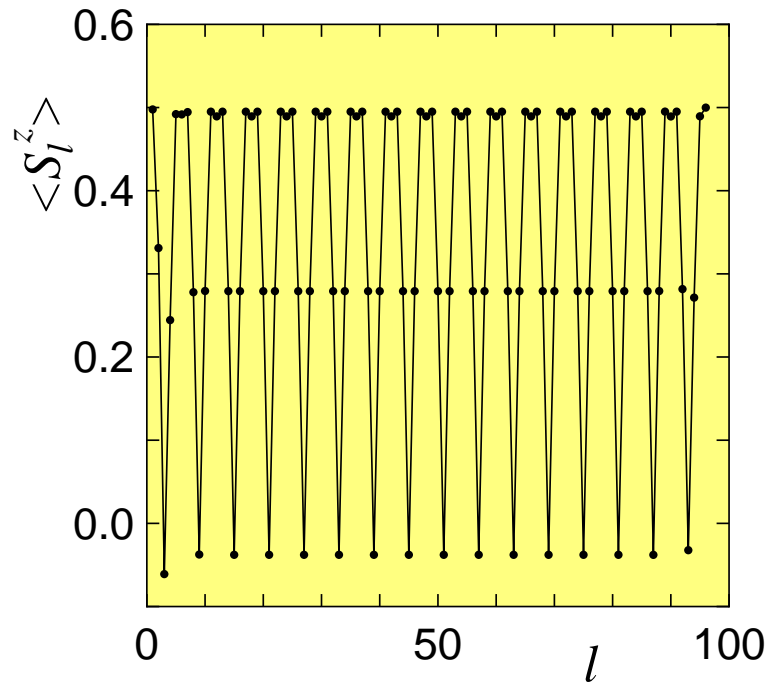
ϕ_1 と ϕ_2 が完全に交互なら

$\langle S^z \rangle$ の並び方は

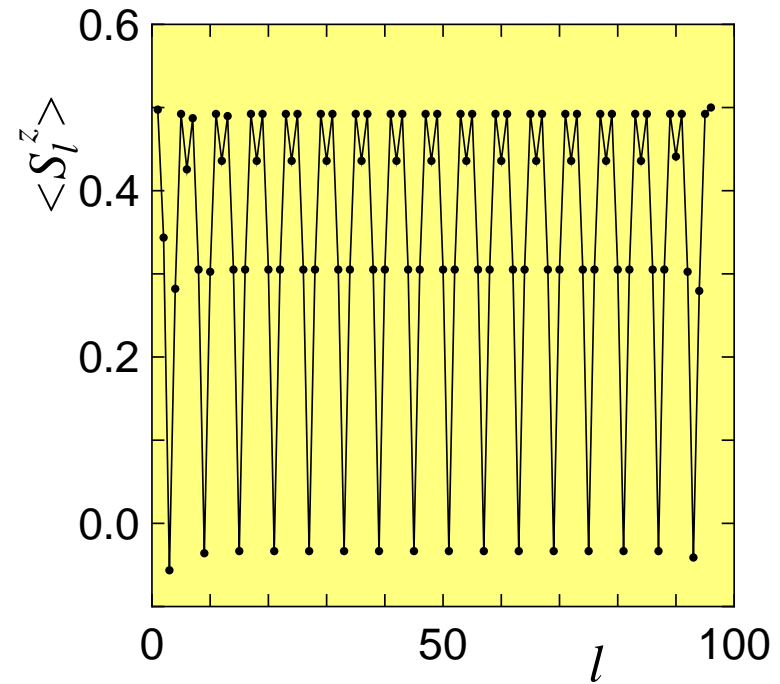
$$\overbrace{\begin{pmatrix} 1 \\ 2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ 2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ 2 \end{pmatrix}}^{\phi_1} \underbrace{\begin{pmatrix} 1 \\ 3 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} -1 \\ 6 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ 3 \end{pmatrix}}_{\phi_2} \overbrace{\begin{pmatrix} 1 \\ 2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ 2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ 2 \end{pmatrix}}^{\phi_1} \underbrace{\begin{pmatrix} 1 \\ 3 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} -1 \\ 6 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ 3 \end{pmatrix}}_{\phi_2}$$

DMRGで $(2/3)M_s$ プラトースピン配置を見る

$$\overbrace{\left(\frac{1}{2}\right) \left(\frac{1}{2}\right) \left(\frac{1}{2}\right)}^{\phi_1} \underbrace{\left(\frac{1}{3}\right) \left(-\frac{1}{6}\right) \left(\frac{1}{3}\right)}_{\phi_2} \overbrace{\left(\frac{1}{2}\right) \left(\frac{1}{2}\right) \left(\frac{1}{2}\right)}^{\phi_1} \underbrace{\left(\frac{1}{3}\right) \left(-\frac{1}{6}\right) \left(\frac{1}{3}\right)}_{\phi_2}$$



$$(\tilde{J}_2, \tilde{J}_3) = (0.80, 0.27)$$

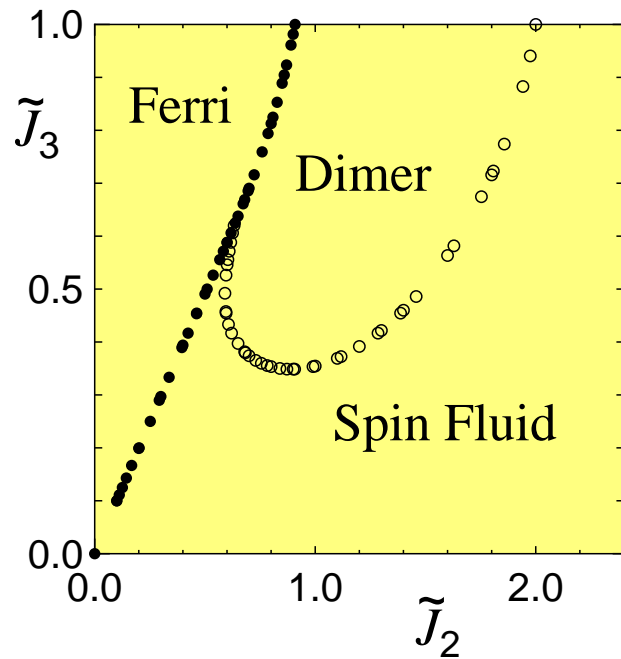


$$(\tilde{J}_2, \tilde{J}_3) = (0.80, 0.30)$$

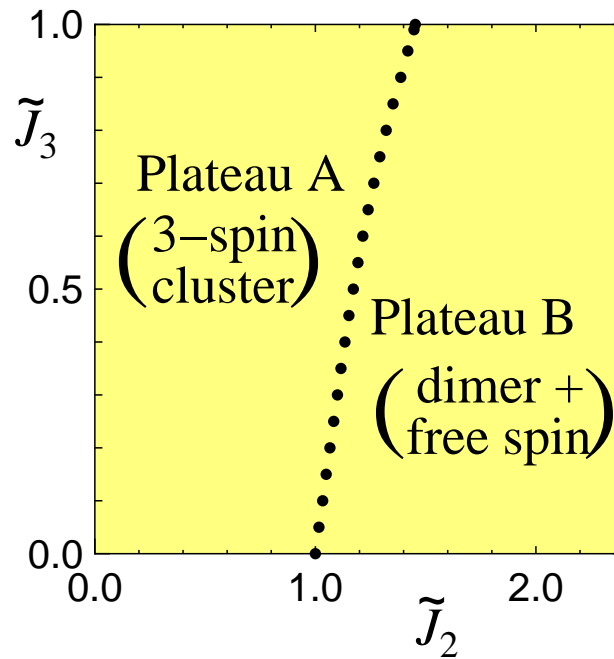
cf. 実効ハミルトニアンの Ising limit $(\tilde{J}_2, \tilde{J}_3) = (0.80, 0.25)$

$M = 0, M_s/3, (2/3)M_s$ 相図

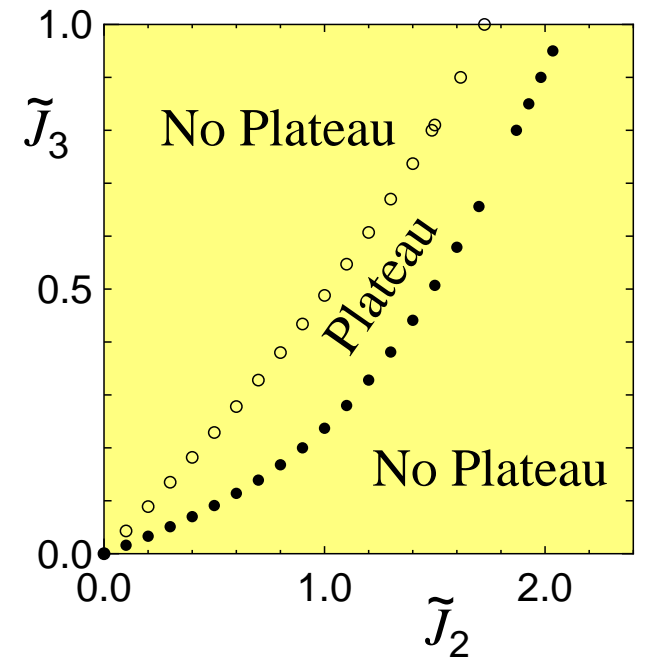
M=0 Phase Diagram



M = (1/3) M_s Phase Diagram

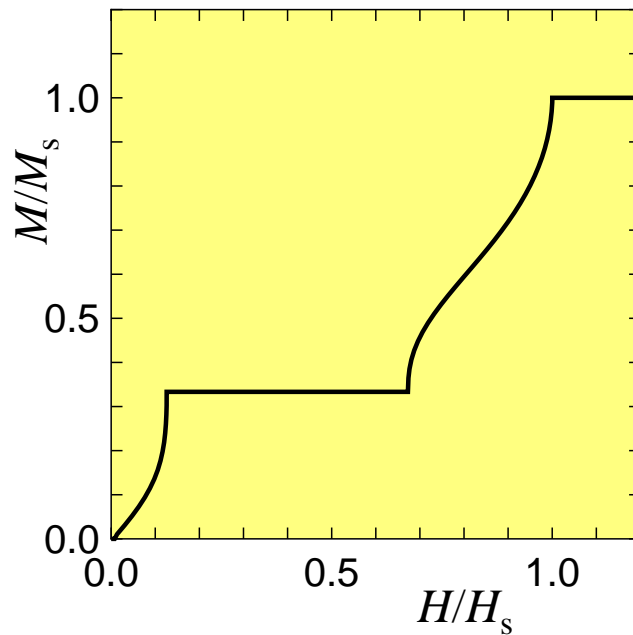


M = (2/3) M_s Phase Diagram



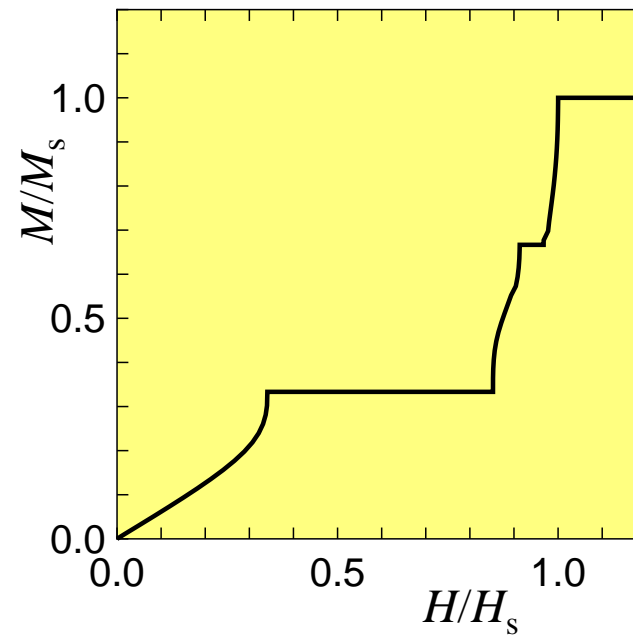
磁化曲線とプラトー

DMRGによる磁化曲線 ($N = 96$ spins)



$$\tilde{J}_2 = 0.80, \tilde{J}_3 = 0.55$$

$(1/3)M_s$ プラトー



$$\tilde{J}_2 = 0.80, \tilde{J}_3 = 0.27$$

$(1/3)M_s, (2/3)M_s$ プラトー

アズライト：実験結果 (Kikuchi et al.)

結晶構造

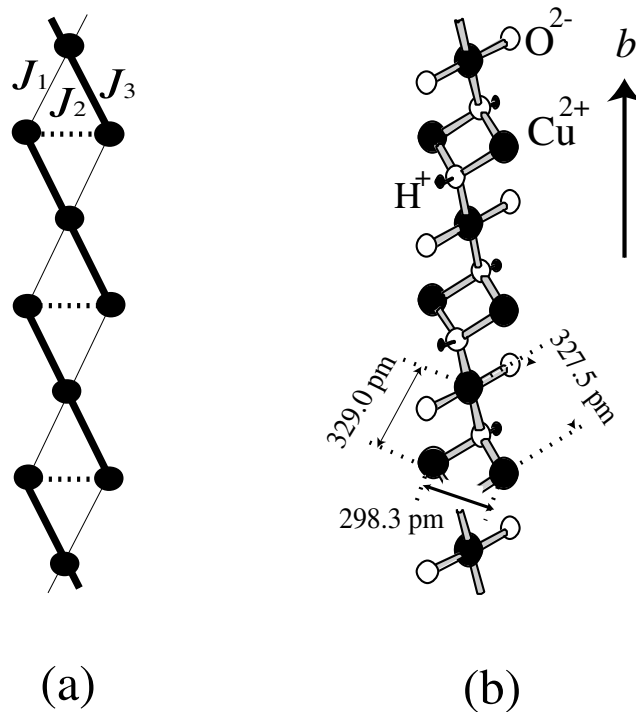
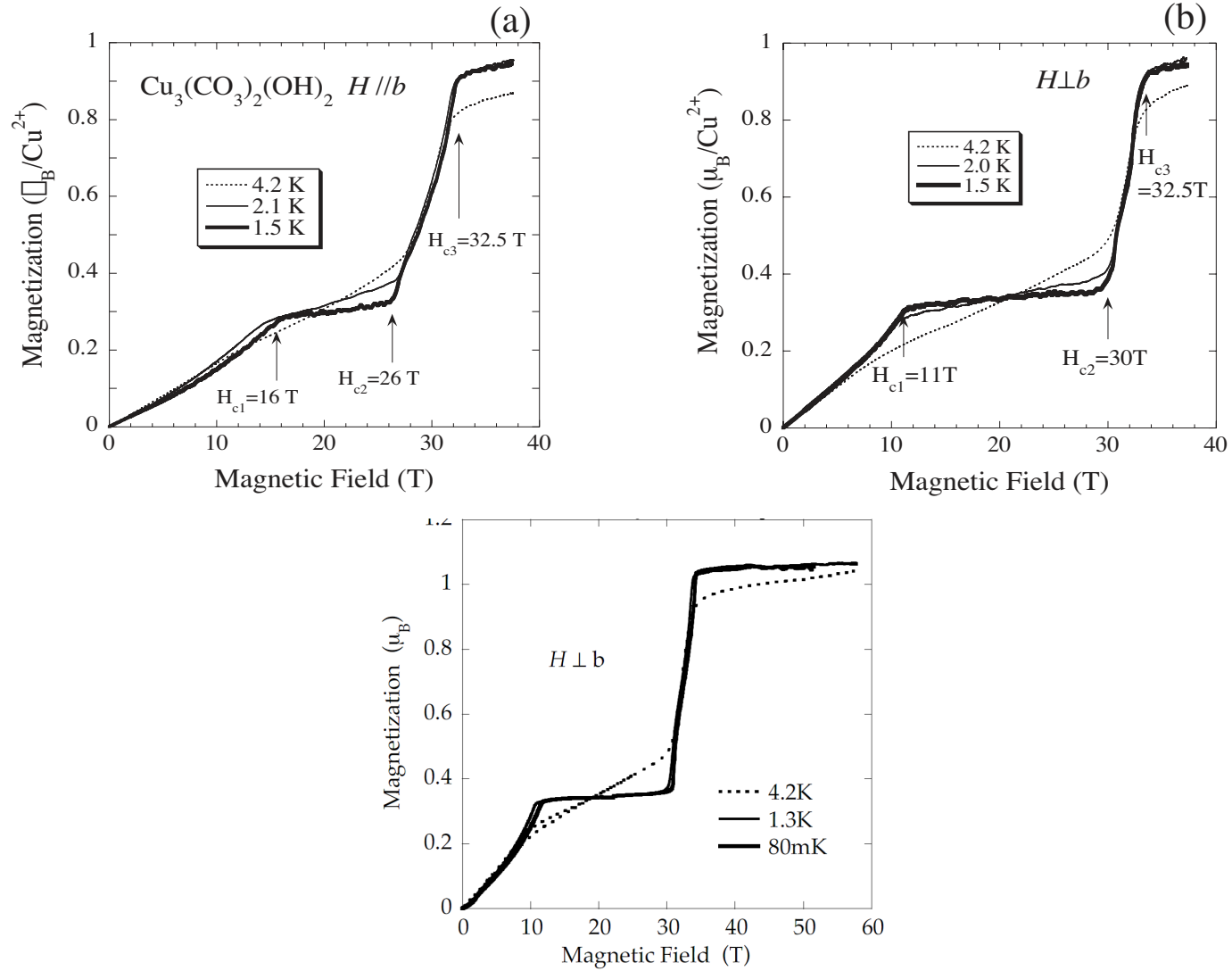


FIG. 1. (a) The distorted diamond chain. Solid circles represent spin 1/2 coupled by exchange interactions J_1 , J_2 , and J_3 . (b) Schematic view of the crystal structure of the azurite $\text{Cu}_3(\text{CO}_3)_2(\text{OH})_2$ along the b axis.

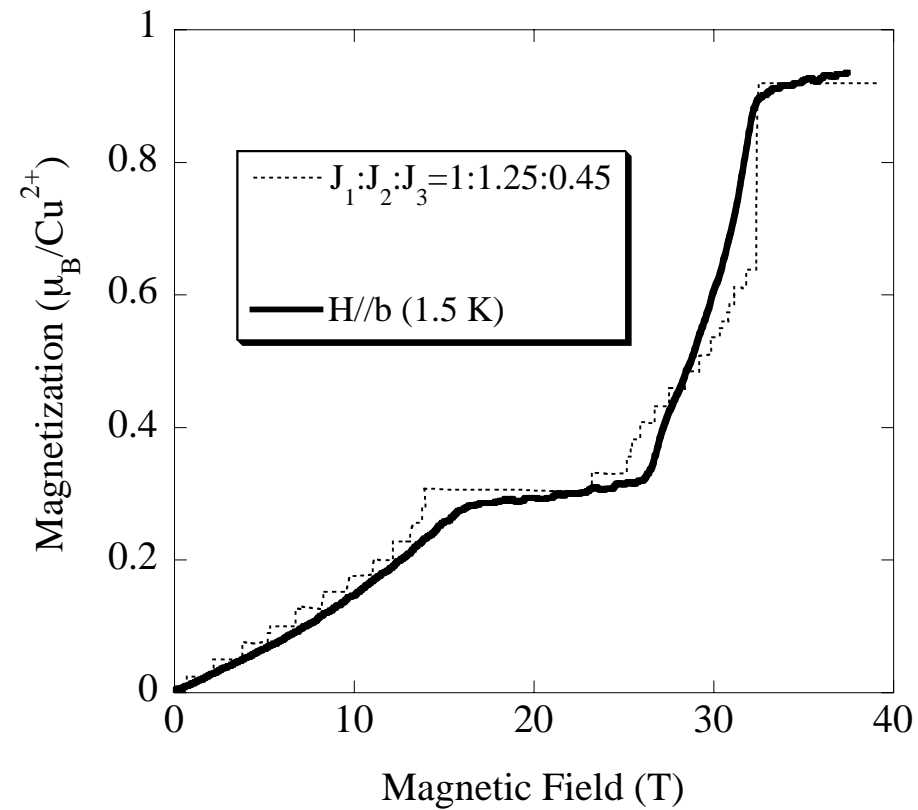
磁化曲線

Kikuchi et al.: PRL 94 (05) 227201, PTP Suppl 159 (05) 1



DMRG磁化曲線とのフィット

$$J_1 : J_2 : J_3 = 1 : 1.25 : 0.45$$



帯磁率 $\chi(T)$

高温展開とのフィット

$$J_1 = 19 \text{ K}, J_2 = 24 \text{ K}, J_3 = 8.6 \text{ K}$$

$$(J_1 : J_2 : J_3 = 1 : 1.26 : 0.45)$$

cf. 磁化曲線フィット

$$J_1 : J_2 : J_3 = 1 : 1.25 : 0.45$$

ダブルピーク

— 2つの特徴的エネルギーの存在を示唆

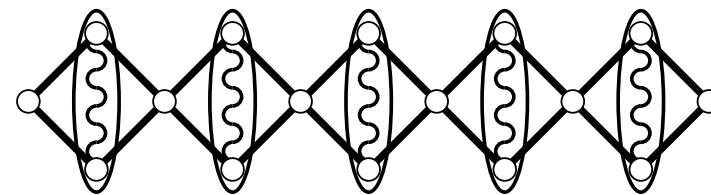
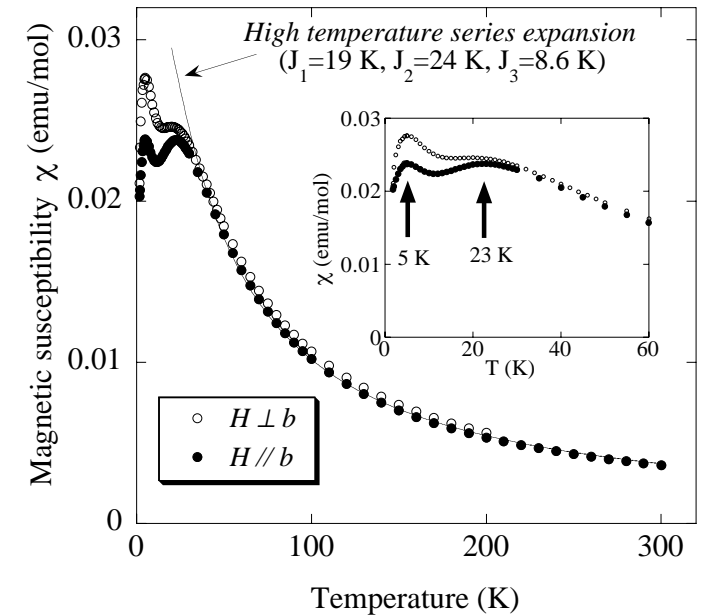
J_2 dimer

$\chi(T)$ の 23K ピーク (高温側),

$C(T)$ の 19K ピーク (高温側)

dimer を介した nearly free spin 間結合 J_{eff}

$\chi(T)$ の 5K ピーク (低温側), $C(T)$ の 4K ピーク (低温側)



Bonner-Fisher (PR 135 (64) A640) (対角化)

Shiroishi-Takahashi (PRL 89 (02) 117201) (Bethe 仮設 + 高温展開 + [50,50]Padé 近似)

$$T_{C,\max}/J_{\text{eff}} = 0.64085\dots \implies J_{\text{eff}} = 7.8 \text{ K}$$

$$T_{\chi,\max}/J_{\text{eff}} = 0.48028\dots \implies J_{\text{eff}} = 8.3 \text{ K}$$

高次摂動 (Honecker & Läuchli: PRB 63 (01) 174407)

$$\frac{J_{\text{eff}}}{J_2} = (\bar{J}_1 - \bar{J}_3)^2 \left\{ \frac{1}{2} + 3(\bar{J}_1 + \bar{J}_3) + 3\bar{J}_1\bar{J}_3 - \frac{(\bar{J}_1 + \bar{J}_3)[107(\bar{J}_1^2 + \bar{J}_3^2) - 406\bar{J}_1\bar{J}_3]}{64} + \dots \right\}$$

$$\frac{J_{\text{eff}}^{\text{NNN}}}{J_2} = \frac{(\bar{J}_1 + \bar{J}_3)(\bar{J}_1 - \bar{J}_3)^4}{4} + \dots$$

$$\bar{J}_1 \equiv J_1/J_2, \quad \bar{J}_3 \equiv J_3/J_2$$

からは $J_{\text{eff}} = 14 \text{ K}$ cf. 実験からは $J_{\text{eff}} \sim 8 \text{ K}$

摂動の収束に問題あり

高磁場 ESR の実験 (Ohta et al.: JPSJ 72 (03) 2464) , NMR

比熱からのエントロピー評価 , (dimer) + (nearly free spin) 描像を支持

dimer + nearly free spin 描像で良さそうだが ,

完全に自由度が分離できるわけではない

パラメーター論争 — Gu, Suの主張, J_3 はフェロ?

Gu, Su (PRL 97 (06) 089701 (comment), PRB 75 (07) 174437)

finite-temperature transfer matrix

renormalization group (TMRG)

磁化率データは

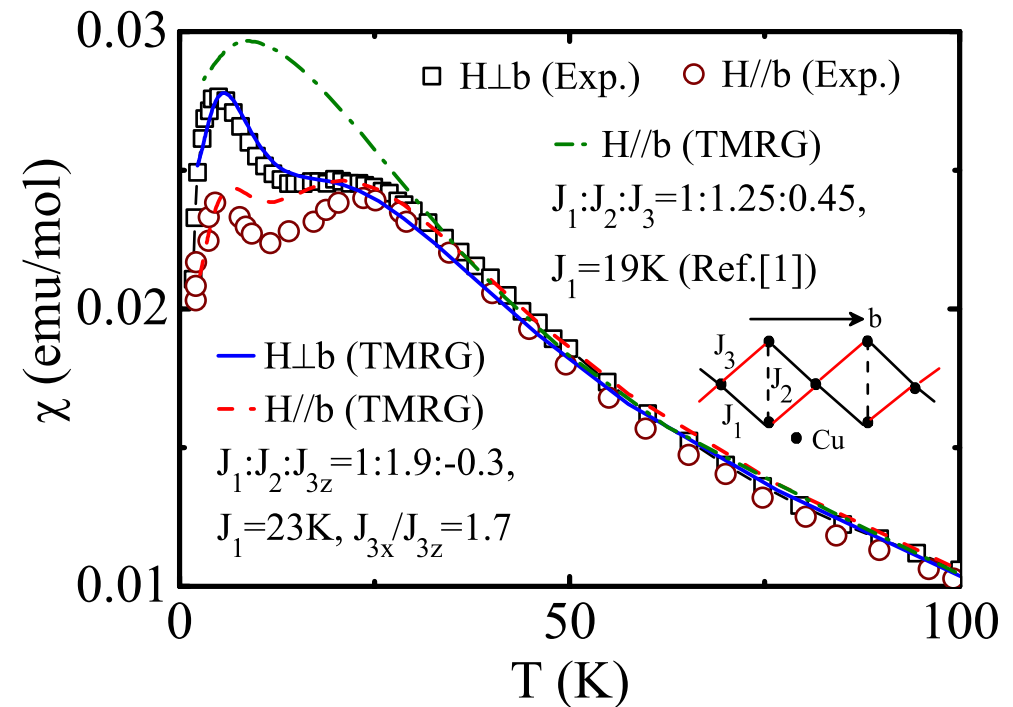
$$J_1 : J_2 : J_{3z} = 1 : 1.9 : -0.3,$$

$$J_{3x}/J_{3z} = J_{3y}/J_{3z} = 1.7$$

でよくフィットできる

(J_3 のみ異方的フェロ!).

我々のparameterではダブルピーク
が出ない

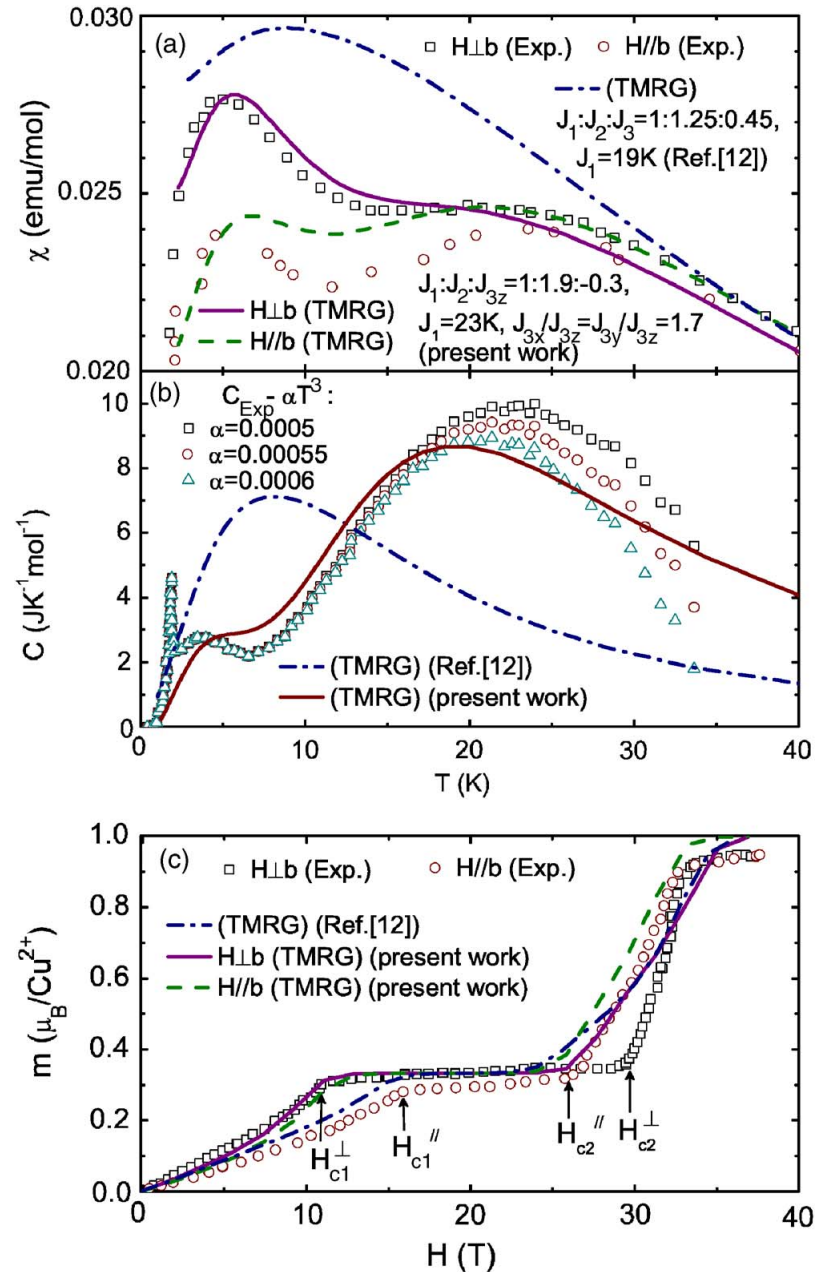


PRL 97 (06) 089701

Gu , Su : PRB 75 (07) 174437

Ref[12] は Kikuchi et al.

PTP. Suppl 159 (2005) 1



我々の反論(PRL 97 (06) 089702 (reply))

Gu , Su : $J_1 : J_2 : J_{3z} = 1 : 1.9 : -0.3$, $J_{3x}/J_{3z} = J_{3y}/J_{3z} = 1.7$

J_1 と J_3 のボンドは長さが近く , 角度もほぼ同じ

J_1 — 327.5 pm, 113.7°

J_3 — 329.0 pm, 113.5°

F と AF の違いが出るとは思えない .

銅の $S = 1/2$ で極端な XXZ 異方性は通常見られない

Gu 達の parameter では磁化曲線がよくフィットできない

我々の parameter でダブルピークが出ないことの指摘は有意義

… 本音を言うと …

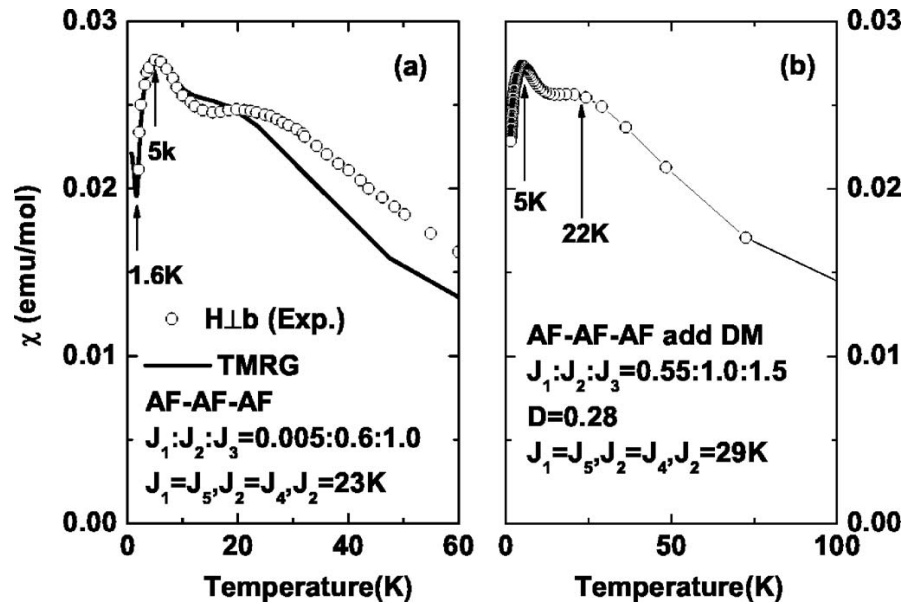
Gu 達のはまともなパラメーターと思えない

偶々 , $\chi(T)$ が実験とよく合っただけではないのか？

Yan-Chao Li (JAP 102 (2007) 113907)

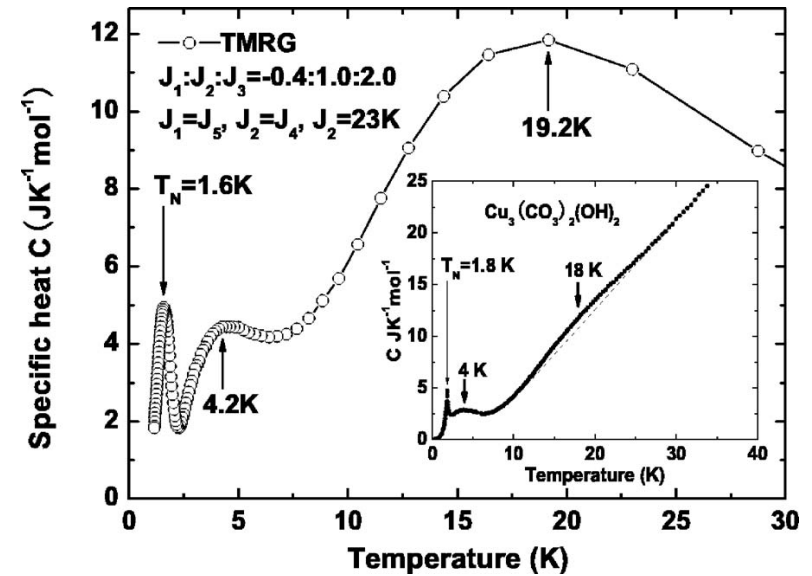
TMRGでAF-AF-AFやAF-AF-Fの場合をいろいろ調べた

$\chi(T)$ のダブルピークはしばしば出る



AF-AF-AF

AF-AF-AF-DM



AF-AF-F (best fit)

Mikeska, Luckmann : PRB 77 (2008) 054405

解析的な励起の理論 ,

対角化 (full-18 site , Lanczos-24 site)

spectrum , dynamics

非弾性中性子散乱の結果 (Rule et al., PRL 100 (2008) 117202)

と比べると , フェロ結合はない

ただし , Rule達は少なくとも1つはフェロだとしている

Kang et al.(JP-CM 21 (2009) 392201)

第一原理計算(GGA+U)でJを見積

フェロモデルを否定

J_2 が最大だが, interchainも J_3 の半分以上

きちんと $\chi(T)$ を計算していない

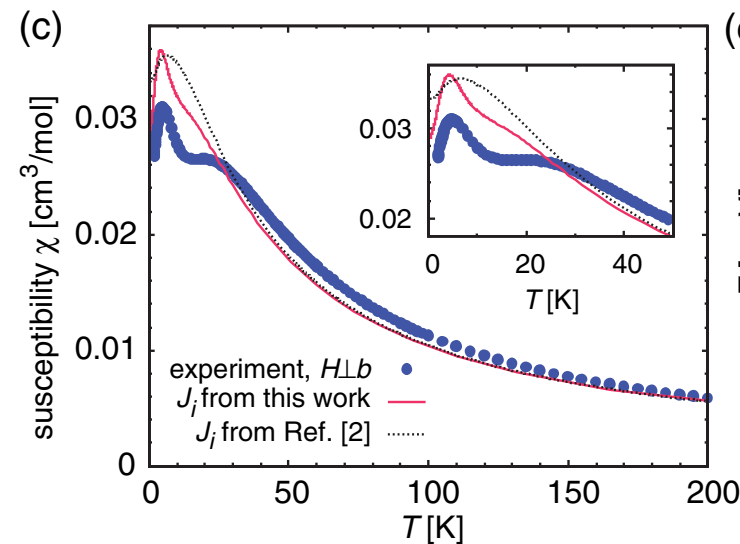
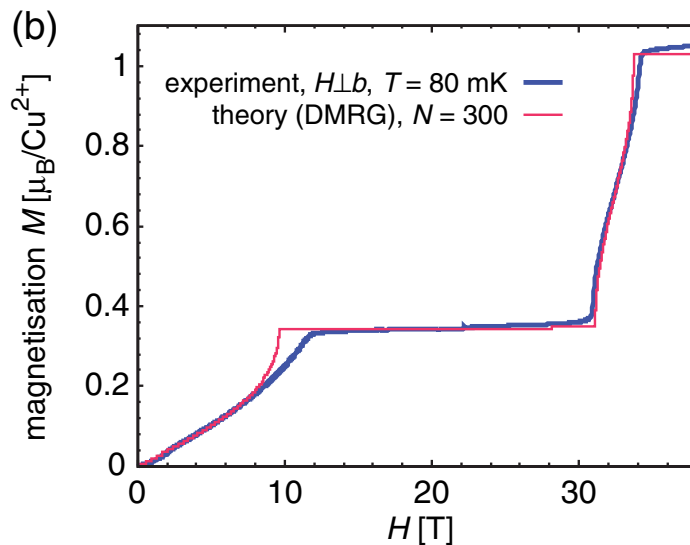
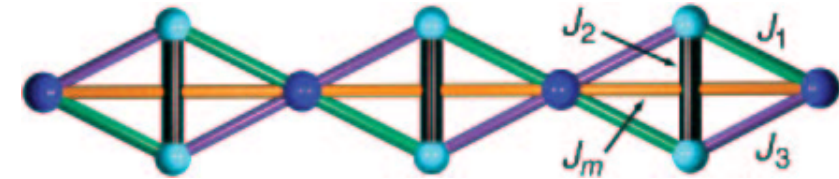
Jeschke達のパラメーター

Jeschke他16人(!), PRL 106 (2011) 217201

第一原理計算(GGA+U)で種々のJを計算

⇒ J_1, J_2, J_3, J_m に限定

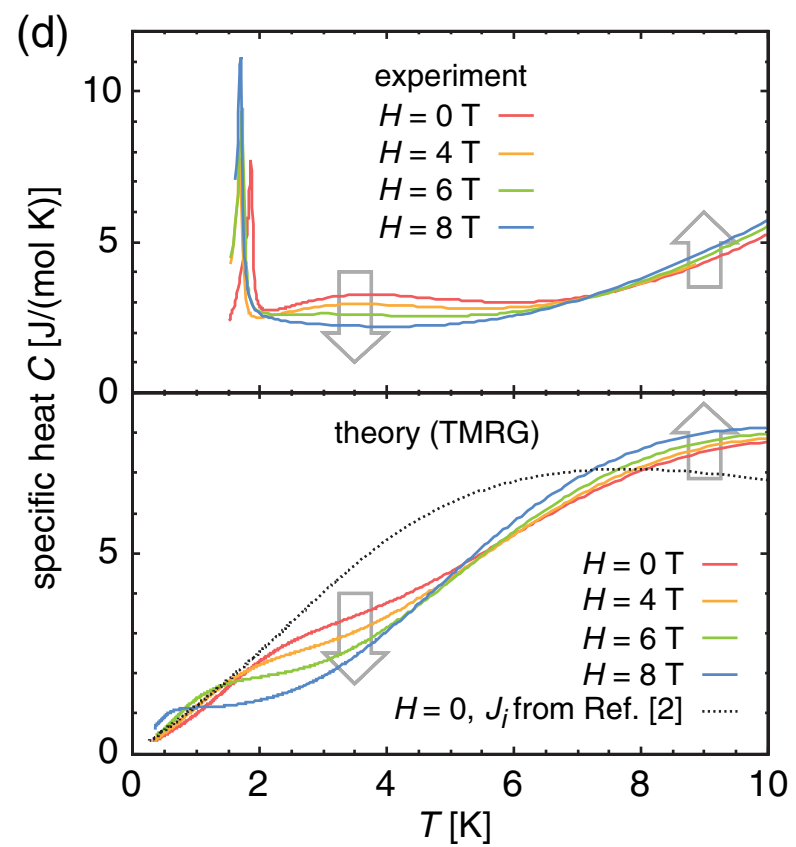
磁化曲線と非弾性中性子散乱に合うように少し修正



$J_1 = 15.51\text{K}$, $J_2 = 33\text{K}$, $J_3 = 6.93\text{K}$, $J_m = 4.62\text{K}$ (Jeschke et al.)

$J_1 = 20\text{K}$, $J_2 = 25\text{K}$, $J_3 = 9\text{K}$ (Ref.[2], Kikuchi PTP)

比熱



Honecker, Hu, Peters, Richter (JP-CM 23 (2011) 164211)

Jeschke達の J_m モデルに基づいた理論構築

excitation spectrum など

非弾性中性子散乱結果 (Rule et al , PRL 100 (2008) 117202)

をよく説明

Jeschke et al. , Honecke et al. は妥当に思われる (岡本私見)

パラメーター数が増えてはいるが …

J_m が相図 ($M = 0, M_s/2, (2/3)M_s$) にどう効くか？

まだ調べられていない

(これは我々の仕事のようにだ — やってみるか)

非弾性中性子散乱

非弾性中性子散乱

Rule et al , PRL 100 (2008) 117202

Gibson et al , PRB 81 (2010) 140406

(muon spin rotation **も**)

Rule et al, PRB 83 (2011) 104401

Rule et al. PRB 84 (2011) 184419

0.05K ~ 20K (cf. $T_N = 1.7\text{K}$) ,

磁場 up to 11T

interchain **は** intrachain の 10%位 ?

anisotropic staggered field

(\Leftarrow interchain ?) **も重要**

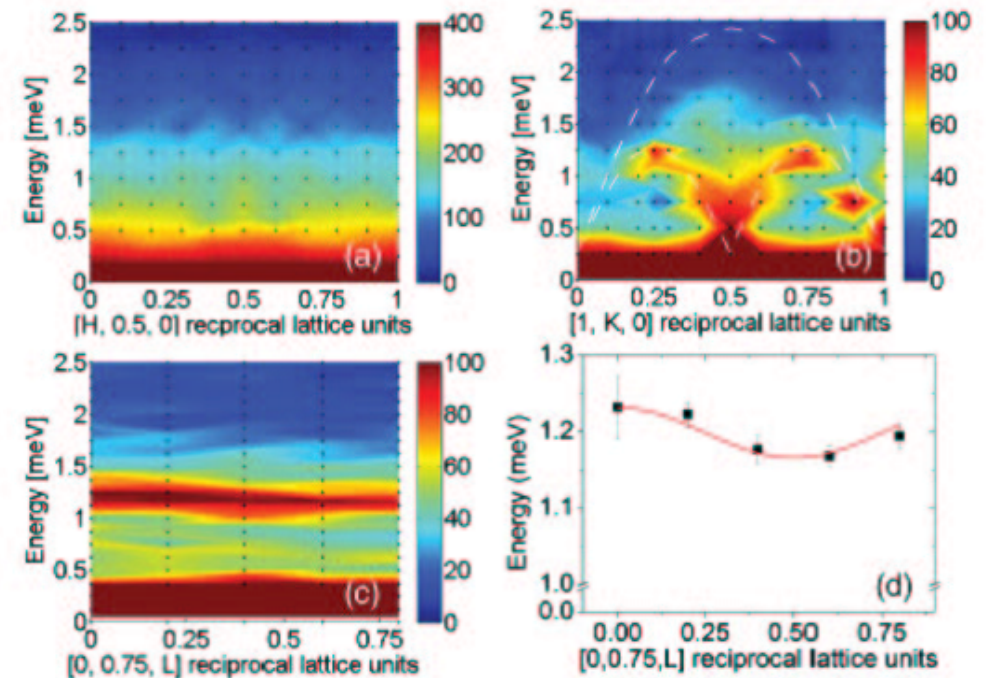


FIG. 2. (Color online) Constant- Q energy scans taken along each of the principal lattice directions H , K , and L in azurite [labeled (a), (b), and (c), respectively]. The intensity of each data set was normalized to the elastic intensity. Black spots indicate the point density while smoothing has been applied. The dashed line in (b) is a guide to the eye. (d) A cosine fit to the excitation observed in (c) revealing an amplitude of 0.03 meV. This indicates minimal dispersion along the L direction around an order of magnitude less than along the K direction.

スピン配置 — 1/3 プラトーから飽和まで

Kikuchi et al. (PTP Suppl 159 (2005) 1)

proton の NMR

1/3 プラトーは B タイプ

(dimer+monomer, 量子的)

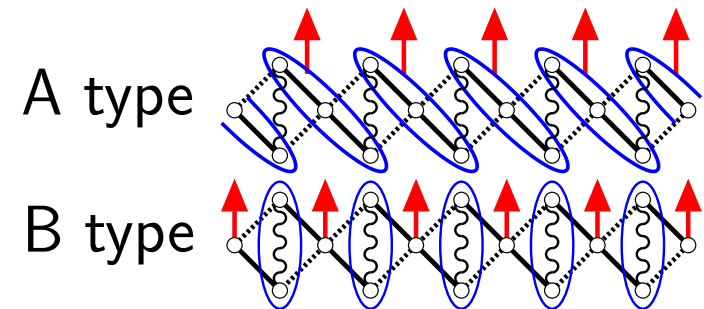
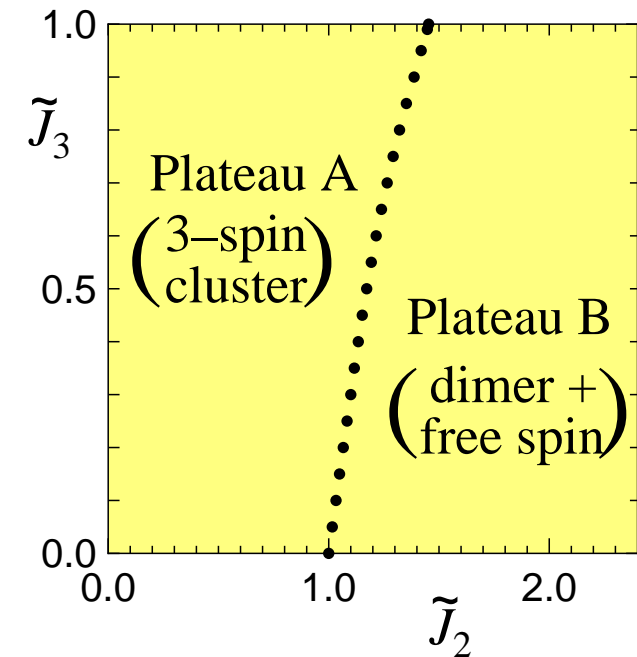
Aimo et al. (PRL 102 (2009) 127205)

$^{63,65}\text{Cu}$ の NMR

1/3 プラトーは B タイプ

(dimer+monomer, 量子的)

dimer site のスピンは $\sim 0.1\mu_B$



Aimo et al. (PRB 84 (2011) 012401)

proton-NMR で $1/3$ プラトーから飽和まで (31 ~ 34T)

スピン配置は canted Néel で特に異常はない

$2/3$ プラトーはない

Papers related to the high field ESR of azurite

1) T. Kamikawa *et al.*, **Physica B** 329-333 (2003) 988-989

$g_a=2.098$, $g_b=2.128$, $g_c=2.110$ (90K)

Very broad **linewidth up to 3T**: High field ESR is essential (\times X-band ESR)

2) H. Ohta *et al.*, **J. Phys. Soc. Jpn.** 72 (2003) 2464-2467 (**citations:41**)

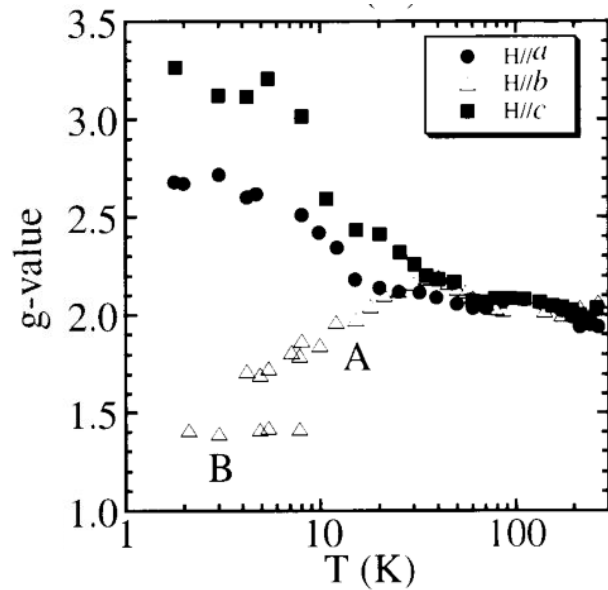
Dynamical g-shift below 23 K spin fluid (SF) phase is suggested

Observation of **dimer excitation** (H//b, 1.8K) with a gap of **1057GHz(50K)**

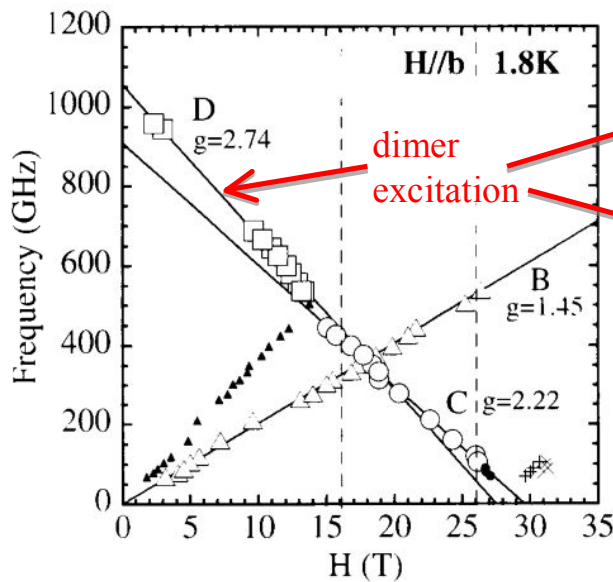
Change of dimer excitation in the 1/3 magnetization plateau region

Dimer excitation is from the ground state (Temperature dependence of ESR intensity)

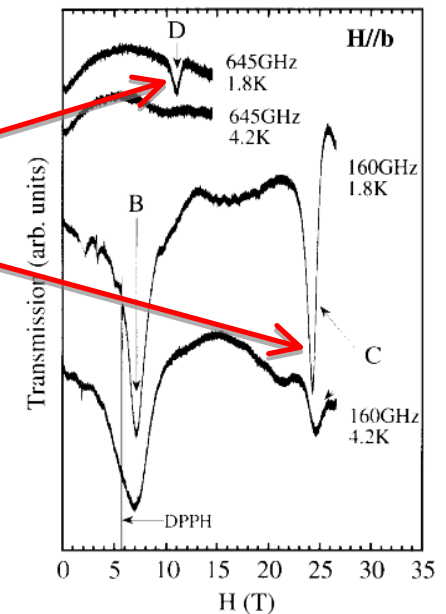
Forbidden transition \longrightarrow existence of Dzyaloshinsky-Moriya interaction



Dynamical g-shift



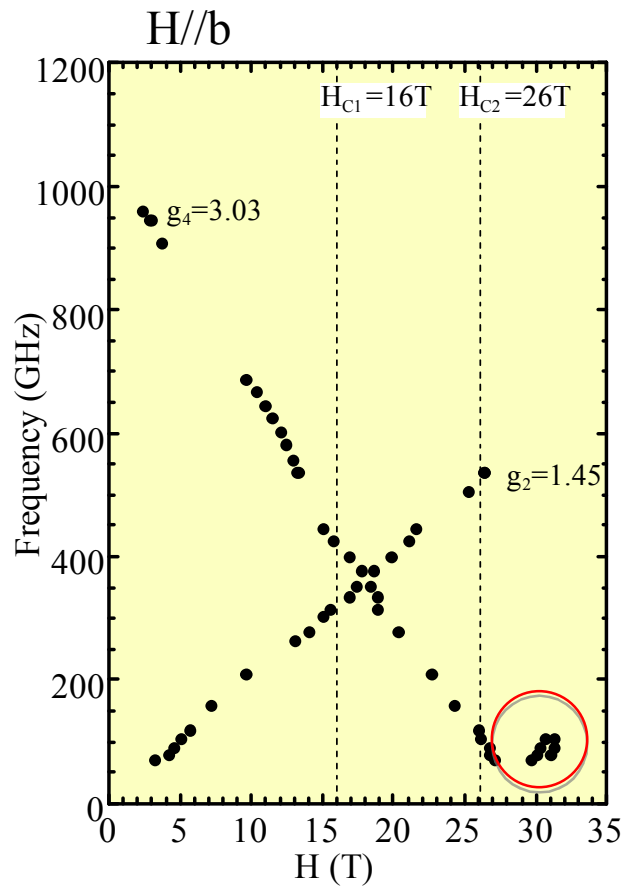
Frequency-field relation at 1.8K



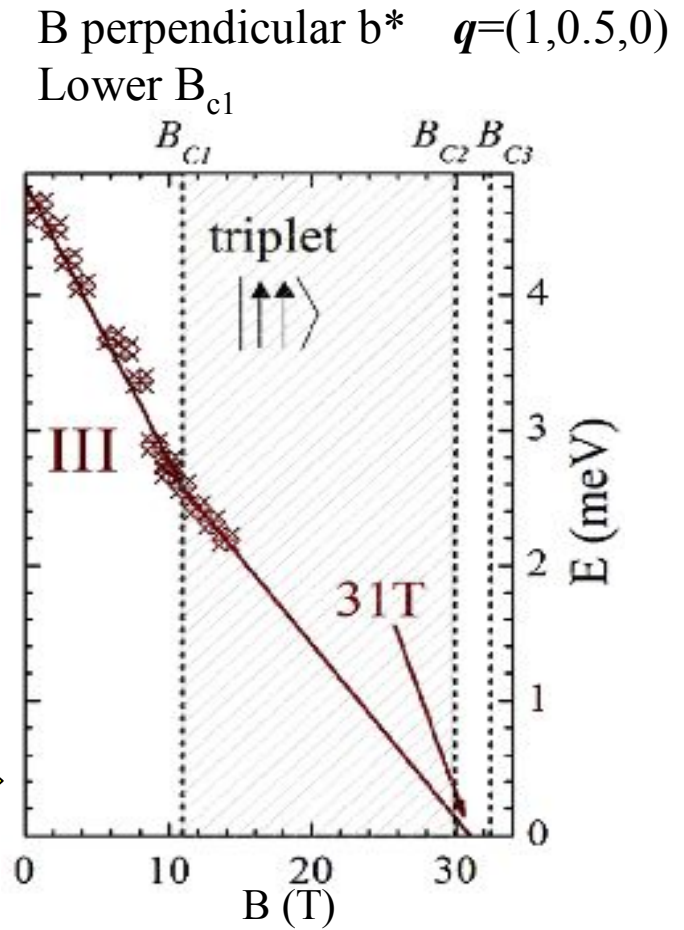
Dimer excitation from the ground state

Comments on dimer excitations: No up going branch

- Quick
- High resolution
- High field
- Only at Γ point



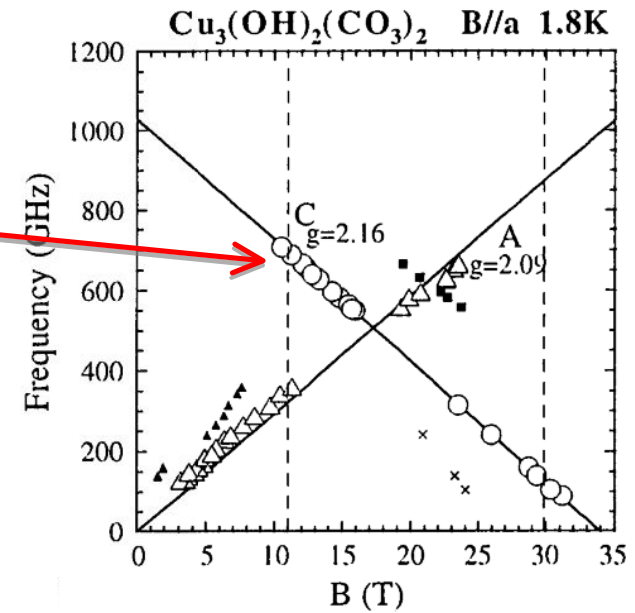
H. Ohta *et al.*, JPSJ (2003): ESR



K. Rule *et al.*, PRL (2008): Neutron

3) H. Ohta *et al.*, **Physica B** 346-347 (2004) 38-44
 Observation of **dimer excitation** (H//a, 1.8K)

4) S. Okubo *et al.*, *J. Magn. Magn. Mater.* 272-276 (2004) 912-913
 Observation of AFMR at 0.5 K ($T_N=1.86K$)
 AF gaps 126 GHz (5.9K) for H//a
 35 GHz (1.6K) for H//b

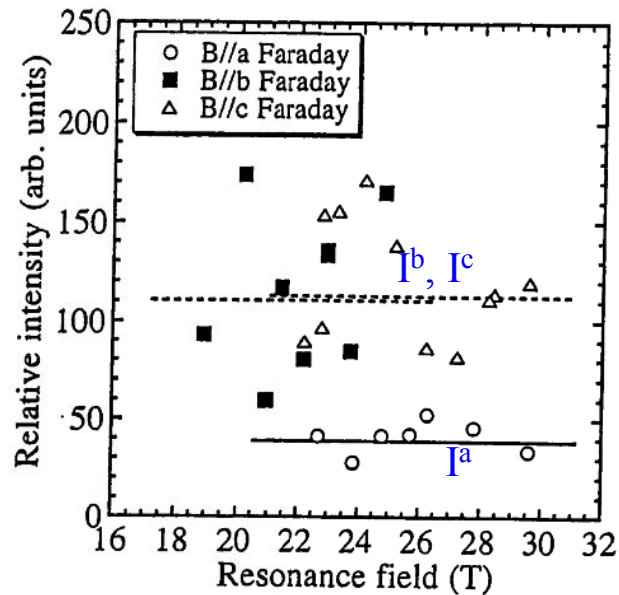


5) S. Okubo *et al.*, **PTP Suppl.** 159 (2005) 11-16

Estimation of Dzyaloshinsky-Moriya interaction from dimer excitation ESR intensity

Sakai's theory (Faraday): $I^a:I^b:I^c=(D^a)^2:(D^b)^2:(D^c)^2$

Experiment (Faraday): $I^a:I^b:I^c=6:10:10 \longrightarrow D^a:D^b:D^c=1:1.29:1.29$



Future issues

- a) Accuracy and normalization of ESR intensity
- b) Two different chain sites