

Title	残留軌道モーメントをもつ系の磁気励起
Author(s)	望月, 和子
Citation	大阪大学低温センターだより. 15 P.9-P.12
Issue Date	1976-07
Text Version	publisher
URL	http://hdl.handle.net/11094/4970
DOI	
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

残留軌道モーメントをもつ系の磁気励起

阪大基礎工 望月和子(豊中2345)

磁性体における基底状態に近い励起状態はスピン波の励起されている状態で、低温における熱力学的振舞いがスピン波理論でよく説明されることは古くから知られている。しかし通常のスピン波理論は、磁性を成すイオンの最低軌道状態が、周りのイオンのおよぼす結晶場の影響で一重になっていて、軌道角運動量が消失し各イオンはスピン角運動量 \vec{S} だけをもっている場合に適用される。また、軌道角運動量 \vec{L} が消失しないで残っている場合でも、イオン内のスピン・軌道相互作用が結晶場に比べ十分強ければ各イオンの状態は全角運動量 $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$ で記述できて、また i, j イオン間の交換相互作用も $\vec{J}_i \cdot \vec{J}_j$ に比例する形にかければ \vec{J} を有効スピンと考えると通常のスピン波理論を用いることができる。

イオン内でのスピン・軌道相互作用が結晶場と同程度の大きさの場合には、各イオンの状態は \vec{L} と \vec{S} の両方に複雑に関係している。このような系では結晶全体としての励起をどのように扱えばよいか問題となる。古くは Allen¹⁾ による「time-dependent molecular field」の扱いはあるが、ここでは我々²⁾ の方法に従って、反強磁性体の KCoF_3 を例にとって述べる。結晶構造は cubic perovskite 構造で、Néel 温度は 114°K 、 T_N 以下では tetragonal にひずみ、スピンは tetragonal 軸に平行である。自由な Co^{2+} イオンの最低多重項は $^4F(L=3, S=3/2)$ で 7 重に軌道縮退している。結晶中では立方対称の結晶場によってエネルギーの低い方から 3 重、3 重、1 重に分れて、3 重と 3 重のエネルギー分離は 10^4 cm^{-1} 程度であるから最低の 3 重項だけを考える。この 3 重状態 (4T_1) は、大きさ 1 の有効軌道角運動量 \vec{T} で記述できて、 \vec{T} と真の軌道角運動量 \vec{L} の関係は $\vec{L} = \frac{-1}{2}(3-5\beta^2)\vec{T}$ である。 β は 4T_1 への 4P の混りをあらわす係数。系のハミルトニアンは

$$H = A \sum_i \vec{T}_i \cdot \vec{S}_i + C \sum_i l_{iz}^2 + J \sum_{i,j} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j \quad \dots\dots\dots (1)$$

で記述される。第一項はスピン・軌道相互作用で、 A はスピン・軌道結合定数 λ と $A = -\frac{1}{2}(3-5\beta^2)\lambda$ の関係にある。第二項は tetragonal なひずみによって生じる結晶場をあらわす。第三項は最隣接スピン間の交換相互作用である。 4T_1 状態では電子の空間分布は異方的であるから、一般には異方的交換相互作用を考えなければならないが、 KCoF_3 では異方的部分は小さい。交換相互作用の項を、分子場近似をおこなった一体の部分と残りの部分に分ければ、 H は一体のハミルトニアン $H^{(1)}$ と二体のハミルトニアン $H^{(2)}$ の和になる。 $H^{(1)}$ 、 $H^{(2)}$ は、

$$H^{(1)} = \sum_i (A \vec{T}_i \cdot \vec{S}_i + C l_{iz}^2) - JZ \langle S \rangle \left\{ \sum_{i\uparrow} S_{iz} - \sum_{i\downarrow} S_{iz} \right\} + \frac{N}{2} JZ \langle S \rangle^2, \quad \dots\dots\dots (2)$$

$$H^{(2)} = J \sum_{\langle i,j \rangle} \{ \vec{S}_i - \langle S_i \rangle \} \cdot \{ \vec{S}_j - \langle S_j \rangle \}, \quad \dots\dots\dots (3)$$

で、 z は n, n の数、 $\sum_{i\uparrow} \sum_{i\downarrow}$ は上向き、下向きスピンの部分格子についての和をあらわす。 $\langle S \rangle$ はスピンの熱平均値で温度の関数として self-consistent に決めなければならない。 $H^{(1)}$ は容易に対角化できて、その固有状態は $|l_z, S_z\rangle$ の一次結合であらわされる。それらを $|\mu\rangle$ であらわし、対応するエネルギー固有値を ϵ_μ と書く。 $l = 1, S = 3/2$ であるから one-ion 状態は 12 個あり、 $\mu = 0, 1, 2, \dots, 11$ である。 i -site イオンの $|\mu\rangle$ 状態に粒子を作る fermion operator を $d_{i\mu}^+$ 、消す operator を $d_{i\mu}$ とすると $H^{(1)}$ は μ に関して対角化されていて、

$$H^{(1)} = \sum_{i\mu} \epsilon_\mu d_{i\mu}^+ d_{i\mu} \dots\dots\dots (4)$$

である。また

$$\bar{S}_i = \sum_{\mu\nu} \langle \mu | \bar{S}_i | \nu \rangle d_{i\mu}^+ d_{i\nu} \dots\dots\dots (5)$$

のおきかえをすれば $H^{(2)}$ は $d_{i\mu}^+, d_{i\nu}$ の 4 次項の和であらわされる。

次に一つのイオン内で粒子を ν 状態から μ 状態に移す励起演算子

$$a_{i\mu\nu} = d_{i\mu}^+ d_{i\nu} \dots\dots\dots (6)$$

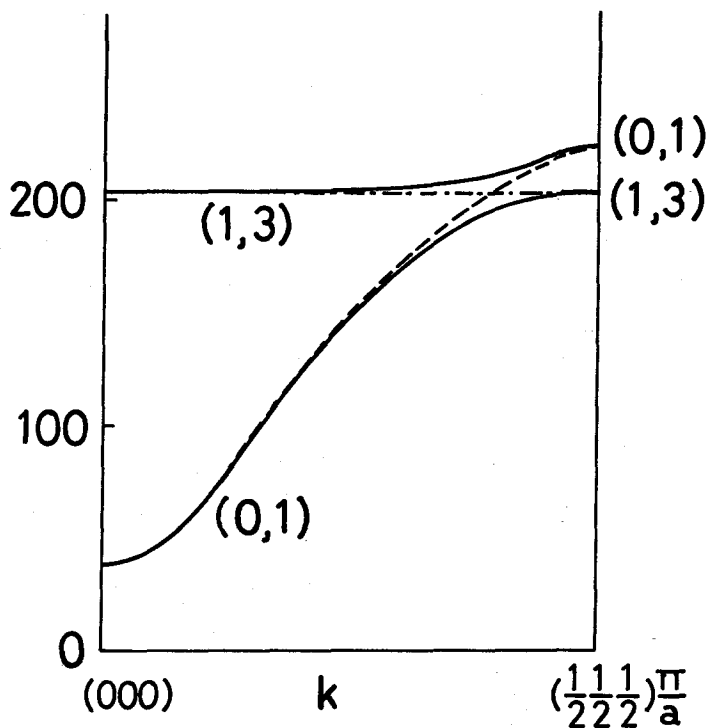
を定義する。これらの励起演算子の交換関係は

$$[a_{i\mu\nu}, a_{i\mu'\nu'}] = a_{i\mu'\nu'} \delta_{\nu\mu} - a_{i\mu\nu} \delta_{\mu\nu'} \dots\dots\dots (7)$$

で、普通の boson の交換関係ではない。ただし絶対零度では粒子の励起は基底状態 $|0\rangle$ からのみおこるので、励起演算子としては $a_{i0\nu}, a_{i\nu0}$ だけを考えれば十分で、これらは boson の交換関係をみたし、従って磁気励起は通常のスピン波と同じように扱うことができる。しかし有限温度では基底状態 $|0\rangle$ 以外からの励起も考えることが必要で(7)の交換関係を正しく用いなければならない。(6)の励起演算子を用いれば、 $H^{(2)}$ はこれらの二次形式になっている。即ち $H^{(2)}$ は異なる site における励起の相互作用をあらわし、このために結晶では励起エネルギーに分散が生じる。励起エネルギーは、励起演算子で作られるグリーン関数 $\langle\langle a_{i\mu\nu}; a_{j\lambda} \kappa \rangle\rangle$ を計算すればその極から求めることができる。グリーン関数を求めるには運動方程式を作るが、そのとき新しくあらわれる高次のグリーン関数を適当な decoupling という操作でもとのグリーン関数に閉じさせなければならない。最も簡単には、高次のグリーン関数に含まれる one-ion 状態の数演算子 $n_{i\mu} = a_{i\mu\mu}$ を one-ion 状態に関する熱平均 $\langle n_{i\mu} \rangle$ でおきかえて外にとり出すという decoupling を用いればよい。

このようにして求めた磁気励起は三つのグループに分れる。一つは transverse モードとよばれるもので、 $S^\pm (= S_x \pm iS_y), l^\pm (= l_x \pm il_y)$ が行列要素をもつ one-ion 状態間の励起に対応してい

て、励起エネルギーは分散をもつ。各モードには部分格子に対応する縮退があり、この縮退は外部磁場がなければ除かれない。第二は longitudinal モードとよばれるもので、 S_z, l_z が行列要素をもつ one-ion 状態間の励起に対応し、励起エネルギーの分散は少ない。第三は local モードで \vec{S} も \vec{l} も行列要素をもたない one-ion 状態間の励起に対応し、分散はなく各イオンに局在している。transverse, longitudinal モードのエネルギー分散は温度によって変化する。温度依存性は one-ion 状態のエネルギー ε_μ が $\langle S \rangle$ を通して温度変化していることと、 $\langle n_{i\mu} \rangle$ が温度に依存していることから生じる。また異なるモード間には coupling はないが、同じグループに属するモード間には coupling がある。例えば、状態 $|0\rangle$ から状態 $|1\rangle$ への励起 (0,1) と、 $|1\rangle$ から $|3\rangle$ への励起 (1,3) は共に transverse モードで、(0,1) 励起エネルギーは dispersion をもつ。0°K では (0,1) 励起しかあられもないが、有限温度では状態 $|1\rangle$ にも分布が生じるから、(1,3) 励起も可能になる。図の点線で示した (0,1) 励起エネルギーと一点鎖線で示した (1,3) 励起エネルギーが交叉すると実線のような二つの mixed mode に分れて、交差点近傍にエネルギー・ギャップができる。下の branch では k の小さなところでは (0,1) 励起が主で、ギャップ近傍では (0,1) 励起と (1,3) 励起が同程度にまざ



っている。境界に近い k の所では (1,3) 励起が主である。上の branch に対しては事情は全く逆である。温度が T_N に近づくと (0,1) 励起の dispersion curve は低エネルギー側にずれて両者は交わり

なくなるので、mixed mode はできない。磁気励起のこのような振舞いは、中性子非弾性散乱や光のラマン散乱強度をしらべることによって観測されるはずである。

ここでのべたのと同様な磁気励起の扱いは Fe^{2+} イオンを含む化合物³⁾、稀土類イオンを含む化合物⁴⁾ にもあてはめることができる。また実験的には、すでにのべた mode-mode coupling の効果が TlAl_2 ⁵⁾ について中性子非弾性散乱で観測されている。

文 献

- 1) R. Alben, Phys. Rev. **184**, 495 (1969)
- 2) K. Motizuki and T. Isu, Solid State Comm. **16**, 807 (1975), **18**, 131 (1976).
- 3) W. B. Yelon and C. Vettier, J. Phys. C **8**, 2760 (1975).
- 4) W. J. L. Buyers, T. M. Holden, E. C. Svenson, R. A. Cowley and M. T. Hutchings, J. Phys. C **4**, 2139 (1971).
- 5) H. G. Purwins, J. G. Houmann, P. Bak, and E. Walker, Phys. Rev. Letters **31**, 1585 (1973).

★ ★ ★ ★ ★ ★ ★ ★ ★ ★ 第 21 回 低 温 研 究 会 ★ ★ ★ ★ ★ ★ ★ ★ ★ ★

4月24日(土)午後1時30分～4時、工学部電気系一階会議室において第21回低温研究会を開催した。今回は光物性関係の第一線で活躍中の方々から話を聞いた。講演題目、講師講演要旨は次の通り。

1. アルカリハライドにおける色中心形成及び消滅機構と励起子

工学部原子力工学科 谷村克己氏

電離放射線又はUV光照射によるアルカリハライドの色中心形成は、励起子の緩和過程の産物として、理解されながらも未だその量も重要な部分は解明されていない。講演では色中心形成と固有発光との関連にふれながら、最近の講演者の研究結果の紹介があり、色中心形成機構解明の現在までの到達点と今後の課題が論じられた。

2. 100KG超電導マグネットを用いたCdTe単結晶の磁気-光ルミネッセンス

工学部電気工学科 田口常正氏

まず100KG超電導マグネットを用いたルミネッセンスの測定法について述べられ、次いでセン亜鉛型半導体CdTe単結晶における種々の発光遷移の磁場効果の実験結果が紹介された。