

石川章夫・鈴木 直・上村

が導いたようにこれもイオン対についての対称性の考察によつて型が決まり、大きさは摂動計算で与えられる。 $H_{\text{外部電場}}$ について2次、 C_0^{2+} イオン間の超交換相互作用について1次以上、スピン軌道相互作用について0次以上の摂動計算でスピン対に依存する分極率が得られるが、我々の C_0F_2 の場合、 ${}^4\Gamma_4$ の中のスピン軌道相互作用を厳密に採り入れた波動函数を既に求めてあるので、 $\vec{S}_j \cdot \vec{S}_l$ ($S = 3/2$) という等々の型が主要項である。数値計算が現在進行中である。

参 考 文 献

- 1) 石川章夫, 守谷 亨: 1969年秋の分科会予稿集 4, 71頁
- 2) H.M.Gladney: Phys. Rev. 146 (1966) 253.
- 3) T.Moriya: J.Phys. Soc. Japan: 23 (1967) 490
- 4) P.Martel, R.A.Cowley and R.W.H.Stevenson: Canadian J.Phys. 46 (1968) 1355; 同じく Phys. Rev. Letters 18 (1967) 162.

2次元反強磁性体に於ける

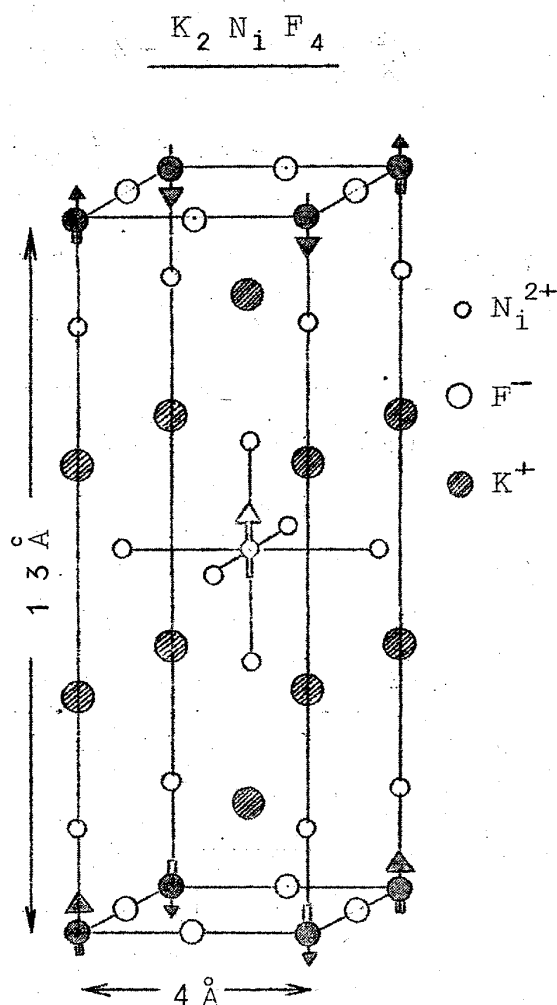
2-マグノン吸収, マグノン-サイドバンド

東大・理 鈴木 直
上村 光

ここ数年間、主としてルチル型、ペロブスカイト型反強磁性体について2-マグノン吸収、マグノン-サイドバンドに関する研究が精力的になされてきた。ここでは最近、Birgeneau 達^{1), 2), 3)}の中性子の実験により、2次元反強磁性が確かめられた $K_2N_1F_4$, $Rb_2M_nF_4$ 等の2次元反強磁性体について、2-マグノン吸収、マグノンサイドバンドのスペクトル線の形状を計算し、その特徴を考察する。

$K_2 N_i F_4$ の結晶構造及びネール状態でのスピン配列を第1図に示す。簡単に言えば、2つの $N_i F_2$ 面の間に2つの $K F$ 面が入った層状構造をしており、それぞれの $N_i F_2$ 面はスピン上向き、下向きの2つの正方部分格子からなっている。構造上からも $K_2 N_i F_4$ は2次元反強磁性体のように振舞うことは容易に想像されるが、実際に2次元反強磁性体であることを裏づける実験事実としては、(1)中性子回折の実験で、ネール点(97.1 °K)より高い温度で Bragg ridge が観測されたこと^{1), 2)}、(2)中性子の非弾性散乱によるマグノンの分散測定の結果、C軸方向の分散がなかつたこと³⁾、などがあげられる。

今、2つの正方部分格子からなる2次元反強磁性体のハミルトニアンを次のように表わす。



第1図 $K_2 N_i F_4$ の結晶構造

$$H = J_1 \sum_{\langle ij \rangle} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j + \frac{1}{2} J_2 \left(\sum_{\langle ii' \rangle} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_{i'} + \sum_{\langle jj' \rangle} \vec{S}_j \cdot \vec{S}_{j'} \right) - g \mu_B H_a \sum_i S_{iz} + g \mu_B H_a \sum_j S_{jz} \quad (1)$$

ここで $J_1 (>0)$, $J_2 (<0)$ はそれぞれ最近接及び第2近接交換相互作用定数、 $g \mu_B H_a$ は異方性エネルギーを示す。また i, j はそれぞれスピン上向き、下向きの部分格子点を動くものとする。(1)式を通常の方法によりマグノン変数で表わせば

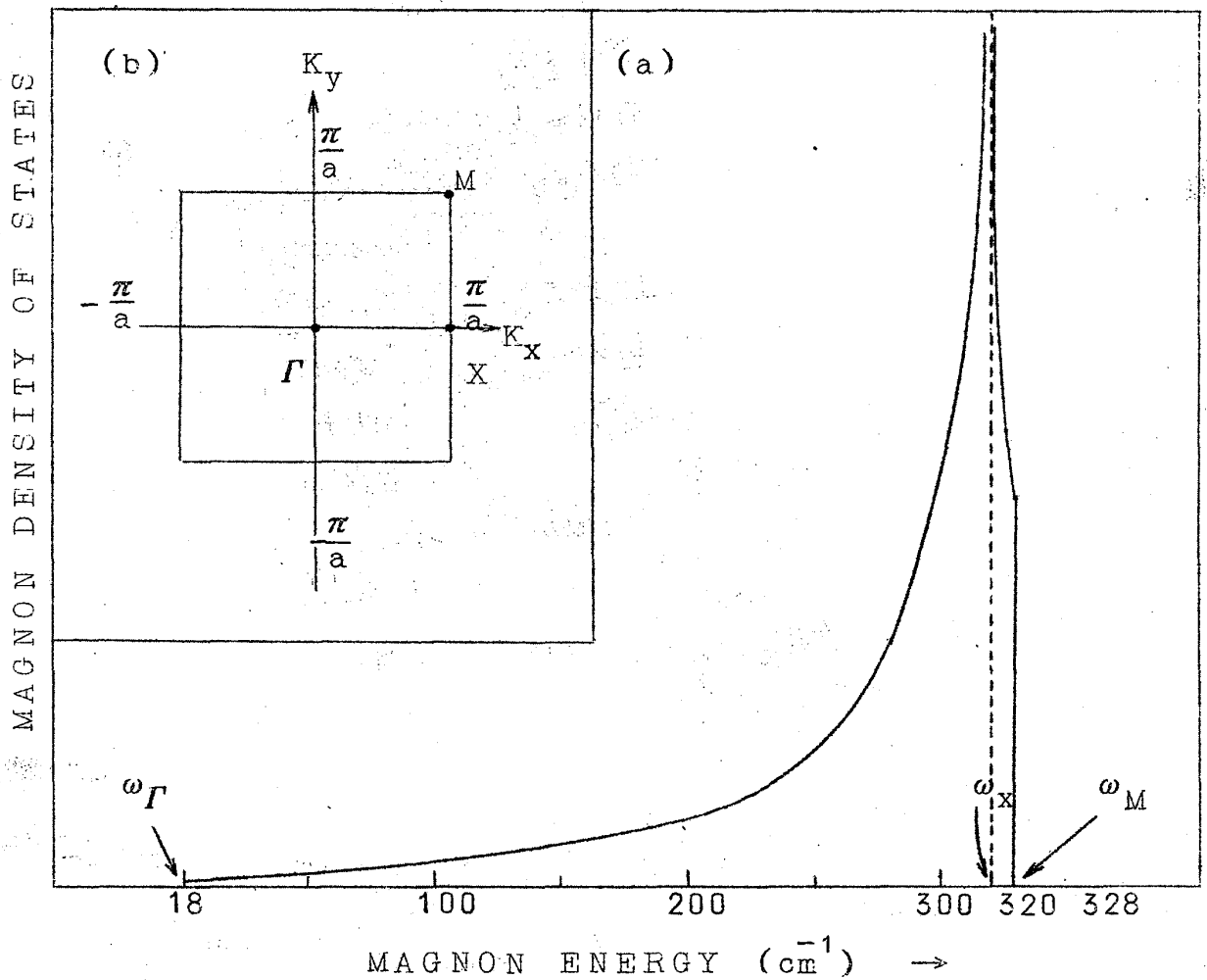
$$H = \sum_k \omega_k (a_k^+ a_k + \beta_k^+ \beta_k) \quad (2)$$

となり、マグノンスペクトルは

鈴木 直・上村 洸

$$\omega_k^2 = \left[g\mu_B H_a + 4SJ_1 - 4SJ_2 + 2SJ_2(\cos aK_x + \cos aK_y) \right]^2 - 16 S^2 J_1^2 \cos^2 \frac{a}{2} K_x \cos^2 \frac{a}{2} K_y \quad (3)$$

で与えられる。この場合のマグノンの状態密度 $\rho(\omega) = \sum_k \delta(\omega - \omega_k)$ は第2図(a)のようになる。



第2図 (a) Magnon Density of States
(b) Magnetic Brillouin Zone

ω_Γ , ω_X , ω_M は、それぞれ Magnetic Brillouin 域 (第2図 (b)) の対称点, Γ , X , M 点におけるマグノンエネルギーであつて

$$\omega_{\Gamma} = \left[(g\mu_B H_a + 4S J_1)^2 - 16S^2 J_1^2 \right]^{1/2}$$

$$\omega_x = g\mu_B H_a + 4S J_1 - 4S J_2$$

$$\omega_M = g\mu_B H_a + 4S J_1 - 8S J_2 \quad (4)$$

で与えられる。

次に、今考えているような2次元反強磁性体について、電気双極子遷移による2-マグノン吸収を考える。2-マグノン同時励起に関する電気双極子モーメントは、スピン演算子を用いて、

$$\begin{aligned} \vec{P} &= \sum_{\langle ij \rangle} \vec{\pi}_{ij} (\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j) \\ &= S \sum_{\mathbf{k}} \vec{\pi}(\mathbf{k}) (\alpha_{\mathbf{k}} \beta_{\mathbf{k}} - \alpha_{\mathbf{k}}^+ \beta_{\mathbf{k}}^+) \end{aligned} \quad (5)$$

$$\vec{\pi}(\mathbf{k}) = \sum_i \vec{\pi}_{ij} e^{-i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j)} \quad (6)$$

のように表わされるから、⁴⁾ (2)式と(4)式を用いて2-マグノン吸収係数を計算すれば、

$$A(\omega) = \frac{4\pi S^2 \omega}{C\eta} \coth\left(\frac{\omega}{4k_B T}\right) \sum_{\mathbf{k}} |\vec{\pi}(\mathbf{k})|^2 \delta(\omega - 2\omega_{\mathbf{k}}) \quad (7)$$

となる。系の対称性を考慮し、さらに最近接イオン対に対してのみ $\vec{\pi}_{ij}$ が零でないとして $\vec{\pi}(\mathbf{k})$ を具体的に求めれば、 $A(\omega)$ は次のようになる。

$$\begin{aligned} A_{\perp}(\omega) &= \frac{32\pi S^2 \omega P_0^2}{C\eta} \coth\left(\frac{\omega}{4k_B T}\right) \sum_{\mathbf{k}} \sin^2 \frac{a}{2} K_x \cos^2 \frac{a}{2} K_y \\ &\quad \times \delta(\omega - 2\omega_{\mathbf{k}}) \end{aligned} \quad (8)$$

$$A_{\parallel}(\omega) = 0 \quad (9)$$

ここに $A_{\perp}(\omega)$ は電気ベクトルがC軸に垂直な場合、 $A_{\parallel}(\omega)$ は平行な場合の吸収係数である。($P_0 = |\vec{\pi}_{ij}|$)。

$T = 0^\circ\text{K}$ における $A_{\perp}(\omega)$ の ω 依存性は第3図のようになり、 $\omega = 2\omega_x$ の所に鋭いピークが期待される。 $K_2 N_1 F_4$ に対しては $J_1 = 78.2 \text{ cm}^{-1}$, $T_2 =$

鈴木 直・上村 洗²⁾
 $0, g \mu_B H_a = 0.59 \text{ cm}^{-1}$,
 $\text{Rb}_2 \text{MnF}_4$ に対しては,
 $J_1 = 4.7 \text{ cm}^{-1}, J_2 = 0$,
 $g \mu_B H_a = 0.24 \text{ cm}^{-1}$ として,
 予想されるピークの位置を計算
 すれば, $\text{K}_2 \text{NiF}_4$ で $\omega = 627$
 cm^{-1} , $\text{Rb}_2 \text{MnF}_4$ で $\omega = 94$
 cm^{-1} となる。

次に, 励起子-マグノン同時
 励起のスペクトル線の形状を計
 算する。励起子-マグノン同時

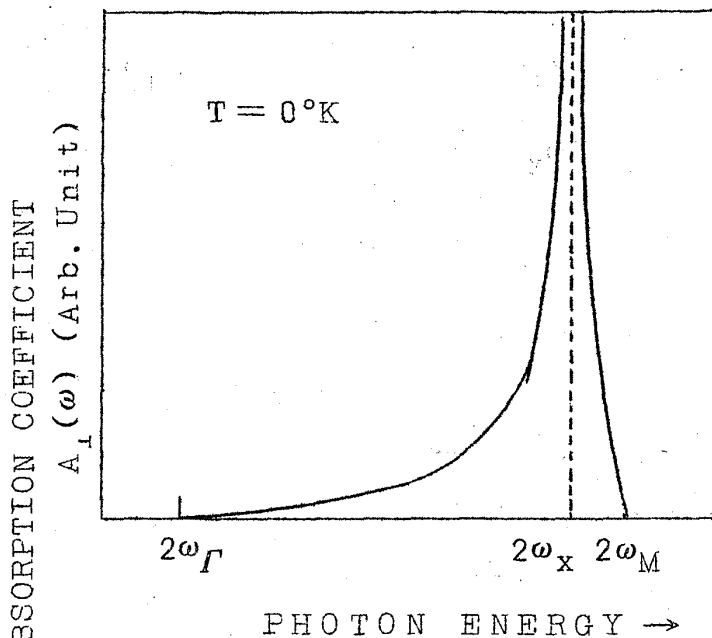
励起の機構として2-マグノン同時励起と同じ機構をとれば, $\text{K}_2 \text{NiF}_4$ の
 ${}^3\text{A}_{2g} \rightarrow {}^1\Gamma$ ($\Gamma = \text{E}_g, \text{T}_{1g}, \text{T}_{2g}$) に関するマグノン-サイドバンドの吸収
 係数 ($T = 0^\circ\text{K}$) は, Green 関数法を用いて, σ スペクトル, π スペクトル
 を問わず,

$$A(\omega) \propto \omega I_M G(\omega) \quad (10)$$

$$G(\omega) = G_0(\omega) / \left[1 - \frac{\rho \omega_0}{4} G_0(\omega) \right] \quad (11)$$

$$G_0(\omega) = \frac{2}{N} \sum_k \frac{16 \cos^2 \frac{a}{2} K_x \sin \frac{a}{2} K_x}{\omega - \omega_k} u_k^2 \quad (12)$$

の形で表わされる。ここに $\omega_0 \equiv 4 J_1 S$, N はスピンの総数, u_k
 はマグノンのハミルトニアンを対角化する時行なり1次変換の係数
 である。また ρ は励起子-マグノン相互作用の強さを表わし, 励起
 状態でのスピンの大きさを S' , 交換相互作用定数を J_1' とすれば $\rho = \frac{J_1' S'}{J_1 S}$
 -1 で定義される。 Ni^{2+} イオンの今考えている励起状態では $S' = 0$ であるか
 ら $\rho = -1$ となり, この場合のスペクトル線の形状の概形は第4図(II)のよ
 うになる。曲線(I)は励起子-マグノン相互作用を無視した場合の吸収曲線
 である。なおこの図は励起子の分散を無視して得たものであり, エネルギーは

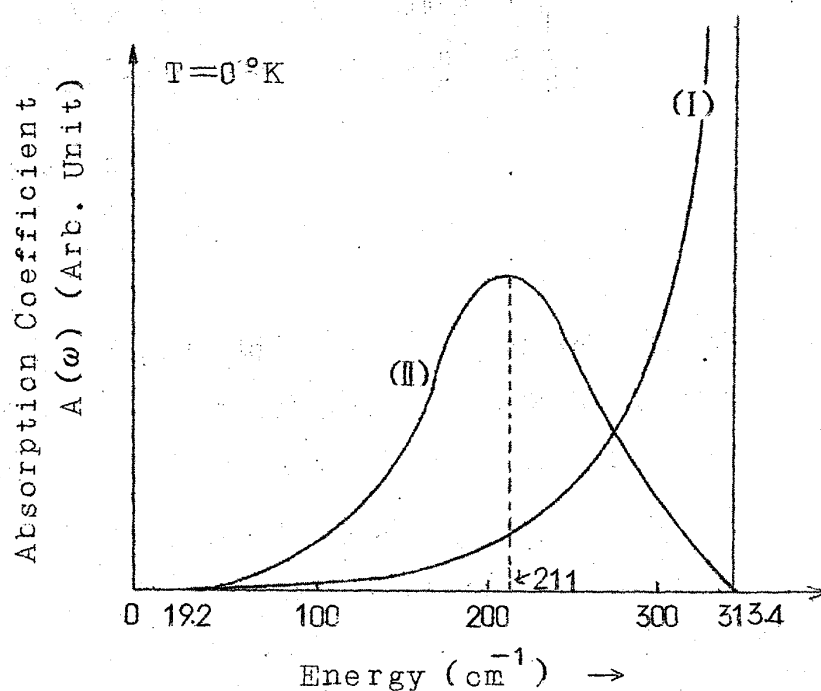


第3図 2-マグノン吸収係数

励起子線から測っている。

最後に2次元反強磁性体 $K_2N_1F_4$ の最も大きな特長の一つをあげるなら、3次元の反強磁性体に比べてスピン相関距離がネール点よりかなり高い温度まで長いということである。事実中性子回折のスペクトル線の幅から求めたスピン相関距離は $T = 2T_N$ で 23\AA もあり2マグノン吸収で最も強く励起されるX点のマグノンの波長 ($\sim 10\text{\AA}$) より

もかなり長い。このことは2次元反強磁性体がネール点より高い温度域でのパラマグノンモードといったものの研究に適していることを示すものであり、常磁性領域におけるこの物質での2-マグノン吸収あるいはマグノン-サイドバンドの研究は、今後の興味ある課題の一つであろう。



第4図 $K_2N_1F_4$ のマグノン-サイドバンド

文 献

- 1) R. J. Bingeneau, H. J. Guggenheim and G. Shirane, Phys. Rev. Lett. 22 (1969) 720
- 2) R. J. Bingeneau, H. J. Guggenheim and G. Shirane, to be published.
- 3) J. Skalyo, Jr., G. Shirane, R. J. Bingeneau and H. J. Guggenheim, Phys. Rev. Lett. 23 (1969) 1394
- 4) Y. Tanabe, T. Moriya, and S. Sugano, Phys. Rev. Lett. 15 (1965) 1023
- 5) J. B. Parkinson and R. Loudon, J. Phys. C (Proc. Phys. Soc.) [2], 1 (1968) 1568