

# アンダーソン局在状態における電子間相互作用の効果

東大・理 竹森直, 上村光

中間濃度領域の不純物半導体では電子は電子相関を強くうけたアンダーソン局在状態にある。特に2つの反平行スピンの電子が同じアンダーソン局在状態を占める時に働く状態内相互作用だけを考えると、我々のグループの以前の結果によれば、<sup>1,2,3</sup> そのような系ではフェルミ準位以下に一電子のみによって占められた

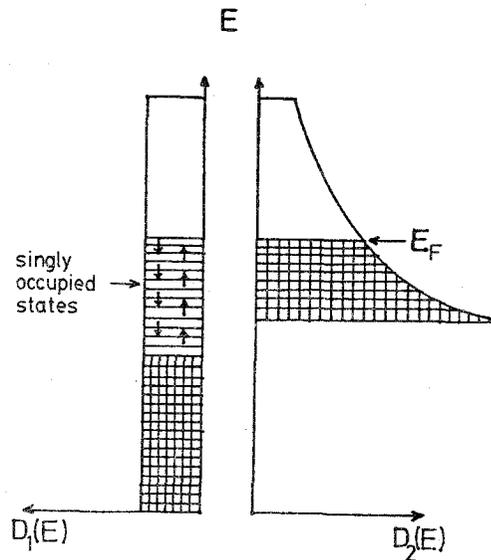


図1 各状態に一番目に入る電子( $D_1$ )と二番目に入る電子( $D_2$ )の状態密度

状態 (singly occupied states) と二電子によって占められた状態 (doubly occupied states) が共存する (図1)。ここで doubly occupied state は  $S=0$  の singlet 状態であるのに対して singly occupied state は  $S=1/2$  のスピンをもっている。

Si:Pにおける小林らの比熱の実験結果<sup>4</sup>によると、極低温で  $T$ -linear から外れる比熱の異常が見られる。これは singly occupied states のスピン自由度がその間の相互作用のために凍結してゆくためと考えられる。ところが同じく Si:P に対する K. Andres<sup>5</sup> や江間ら<sup>6</sup> の帯磁率の実験では、帯磁率は比熱の異常

が見られるのと同じ温度領域でキュリー一則に従う傾向を示している。スピン間の相互作用の影響が見られない。そこで singly occupied states にある電子の局在スピン間に働く相互作用について考える。

電子系のハミルトニアンを強結合モデルで次のように考える。

$$H = H_0 + H_1$$

$$H_0 = \sum_{i\sigma} \epsilon_i c_{i\sigma}^\dagger c_{i\sigma} + \sum_{ij\sigma} t_{ij} c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma}$$

$$H_1 = \frac{1}{2} \sum_{ijkl\sigma\sigma'} \langle ij | U | kl \rangle c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma'}^\dagger c_{l\sigma} c_{k\sigma}$$

$H_0$  は一電子ハミルトニアン,  $H_1$  は電子-電子相互作用で,  $H_0$  の  $\epsilon_i$  や  $t_{ij}$  が乱雑な値をとると考える。このときハミルトニアンの一体部分を対角化した "transfer-diagonal" 表示で電子系のハミルトニアンは次のように書かれる。

$$H = \sum_{\alpha\sigma} \epsilon_\alpha \hat{n}_{\alpha\sigma} + \frac{1}{2} \sum_{\alpha\sigma} U_\alpha \hat{n}_{\alpha\sigma} \hat{n}_{\alpha-\sigma} + \frac{1}{2} \sum'_{\alpha\beta\gamma\delta} \sum_{\sigma\sigma'} U_{\alpha\beta\gamma\delta} c_{\alpha\sigma}^\dagger c_{\beta\sigma'}^\dagger c_{\delta\sigma} c_{\gamma\sigma}$$

ここで  $\alpha, \beta, \gamma, \delta$  は一体部分の固有状態である。才一項は一体部分、才二項は状態内相互作用、才三項はそれ以外の電子間相互作用で  $\alpha, \beta, \gamma, \delta$  の和は  $\alpha = \beta = \gamma = \delta$  の場合を除く。状態  $|\alpha\rangle, |\beta\rangle \dots$  はアンダーソン局在状態と考える。

波動関数は指数関数的に局在すると仮定し、ワニエ・サイト内での相互作用  $\langle i|U|i\rangle$  のみを考えるとき、電子間相互作用の行列要素  $U_{\alpha\beta\gamma\delta}$  のうち最も大きいものは  $U_{\alpha\alpha\alpha\beta}$  のタイプのものであり、次に大きいものは  $U_{\alpha\beta\beta\alpha}$  のタイプである<sup>3</sup>。固有状態  $|\alpha\rangle, |\beta\rangle$  等は規格直交系であるから、 $U_{\alpha\beta\beta\alpha}$  はフントの規則と同じ理由で2つの局在スピン間に強磁性的に働く直接交換相互作用を与える。一方  $U_{\alpha\alpha\alpha\beta}$  は2つの局在スピンが反平行な場合にのみ  $|\alpha\uparrow, \alpha\downarrow\rangle$  と  $|\alpha\uparrow, \beta\downarrow\rangle$  の配位混合によってエネルギーを下げることになるので、その働きは反強磁性的な kinetic-type 交換相互作用を与える<sup>3</sup>。このほば同程度の強さの相互作用が局在スピン間に働くので、状態  $\alpha, \beta$  のスピンに対するスピン・ハミルトニアンは次のようになる。

$$H_{\alpha\beta} = 2J_{\alpha\beta}(r_{\alpha\beta}) \vec{S}_{\alpha} \cdot \vec{S}_{\beta}$$

ここで  $\vec{S}_{\alpha}, \vec{S}_{\beta}$  は  $\alpha, \beta$  状態のスピン、 $r_{\alpha\beta}$  は2つの状態の局在中心間の距離である。  $J_{\alpha\beta}$  は上記2種の相互作用の強さに応じて正負のランダムな値をとる。

この局在スピン間の相互作用の比熱・帯磁率への影響を見るために、簡単なペア・モデルで考える。各局在スピンはそれに最も近い局在スピンとペアを組むとし、従って全スピン系をスピン・ペアの集まりと考える。すると各ペアは  $S=1$  および  $S=0$  の2つの

状態に分かれ、そのエネルギー差は  $J_{\alpha\beta}$  で与えられる。ペアの分配関数を  $Z_{\text{pair}}(J_{\alpha\beta})$  とすると系の自由エネルギーは次のように与えられる。

$$F = -kT \sum_{\text{pairs}} \ln Z_{\text{pair}}(J_{\alpha\beta})$$

$J_{\alpha\beta}$  の分布を  $P(J)$  とすればこれは次のようになる。

$$F = -kT \int dJ P(J) \ln Z_{\text{pair}}(J)$$

$J_{\alpha\beta}$  の分布にはポアソン分布を仮定し、 $J_{\alpha\beta}$  の  $E_{\alpha\beta}$  依存性は

$$J_{\alpha\beta}(E_{\alpha\beta}) = J_0 \exp(-E_{\alpha\beta}/\xi)$$

と仮定して  $P(J)$  を決めて自由エネルギーを計算すれば、比熱及び帯磁率を求めることができる。 $J_0$  としては正負のペアともに同じ絶対値  $|J_0|$  を使い、正負のペアの数の比  $N_+/N_-$ 、局在の長さ  $\xi$  および singly occupied states の数  $N_s$  をパラメータとして実験結果と比較する。

正および負の  $J$  をもつペアの集まりそれぞれに対して別々に比熱と帯磁率を計算した結果が図2である。強磁性的 ( $J > 0$ ) なペアでは帯磁率はキュリー-的であるが、singlet の励起状態があるために、多少キュリー-則りからはずれている。一方基底状態が三重縮退するために、 $T=0$  で残留エントロピーがあるので、比熱

は  $H=0$  (無磁場) では非常に小さい。磁場が加わると比熱の山は急に立ち上がり、ピークは高温側に移動してゆく。反強磁性的なペア ( $J_0 < 0$ ) では帯磁率は小さく、比熱は磁場によってあまり変化しない。

帯磁率を見る限り、強磁性的なペアが実験結果を再現するが比熱の異常の磁場依存性が強すぎるため実験に合わない。実験結果とのよい一致は強磁性的ペアと反強磁性的ペアを同等に混ぜ合わせることによって得られる ( $N_+/N_- = 1$ )。この場合の異常比熱の結果を実験<sup>4</sup>と比べたのが図3である。

ランダム・ペア・モデルは簡単なモデルであるが、実験を再現するパラメータは合理的である。  $|J_0| = 5K$  は状態内相互

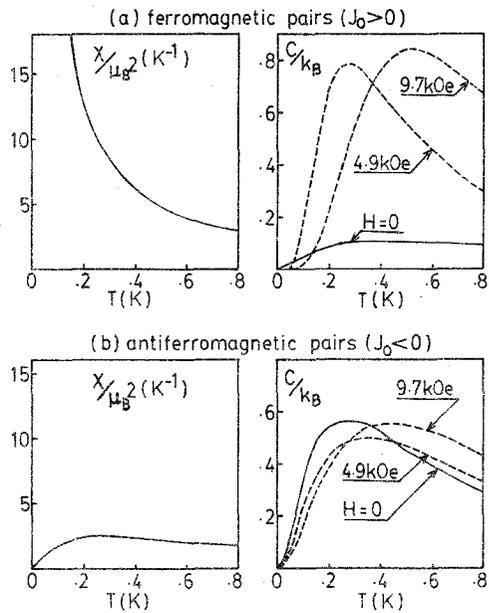


図2 強磁性的ペア(a)と反強磁性的ペア(b)についての比熱(C)と帯磁率( $\chi$ )の計算結果。 $\mu_B$ はボア磁子、 $k_B$ はボルツマン定数。

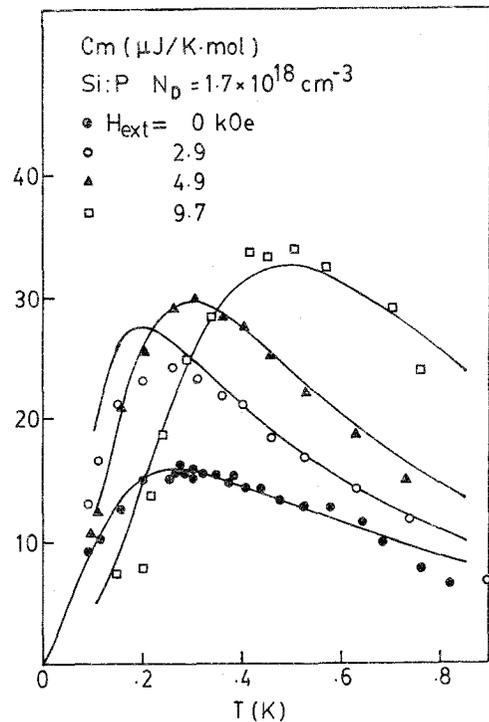


図3 Si:P ( $n_D = 1.7 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ) に対する異常比熱の計算結果(実線)。 $\bullet$ 、 $\blacktriangle$ 、 $\square$ は小林らによる各磁場下での実験結果。

作用と大体同じ程度の大きさであり、局在の長さ( $\xi=81\text{\AA}$ ), 及び singly occupied states の数( $N_s/N_D=33\%$ )は、比熱の  $T$ -linear な部分と高温での帯磁率から見積られた以前の値とも矛盾しない。従ってこの結果から、強く局在したアンダーソン局在電子系では、強磁性的な直接交換相互作用と反強磁性的な kinetic type 交換相互作用が共存し、ともに重要な役割を演じていると結論される。

### 参考文献

1. H. Kamimura in "The Metal Non-metal Transition in Disordered Systems", edited by L.R. Friedman and D.P. Tunstall (Edinburgh:SUSSP Publications), p327.
2. E. Yamaguchi, H. Aoki, and H. Kamimura, J. Phys. C 12, 4801 (1979).
3. H. Kamimura, Phil. Mag. B 42, 763 (1980).
4. N. Kobayashi, S. Ikehata, S. Kobayashi, and W. Sasaki, Solid St. Commun. 32, 1147 (1979).
5. K. Andres, Bull. Am. Phys. Soc. 24, 262 (1979).
6. T. Ema, Master Thesis, Univ. of Tokyo (1980, unpublished).