

## 2次元希釈ハイゼンベルグ反強磁性体の 臨界濃度のスピン依存性

東京理科大学 理工学部 安田 千寿、小口 明秀

実験によると  $S = 5/2$  の2次元ハイゼンベルグ反強磁性体である  $K_2MnF_4$  の Mn イオンを  $S = 0$  の非磁性不純物である Mg イオンで置換するとネール温度  $T_N$  は減少し、 $T_N$  が零となる非磁性不純物の臨界濃度  $x_c$  は約 0.4 で、正方格子のサイト過程のパーコレーションの閾値 0.41 と一致する。これは無限につながったクラスターが存在しないと長距離秩序は存在しえないことより理解できる。一方、 $S = 1/2$  の2次元ハイゼンベルグ反強磁性体である  $La_2CuO_4$  の Cu イオンを Mg イオンで置換すると  $x_c \simeq 0.25$  でパーコレーションの閾値と一致しない [1][2]。スピン波理論とコヒーレントポテンシャル近似 (CPA) を組み合わせた方法を  $T = 0$  の2次元反強磁性ハイゼンベルグ模型に適用してこの違いを調べる。

非磁性不純物を含む正方格子の反強磁性ハイゼンベルグ模型  $H^c = 2J \sum_{\langle ij \rangle} \sigma_i \sigma_j \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j$  を考える。ただし、 $\sum_{\langle ij \rangle}$  はすべての最隣接格子対の和であり、 $\sigma_i$  はサイト  $i$  にスピンがある時 1、非磁性不純物がある時 0 である。不純物系におけるホルシュタイン-プリマコフ変換

$$\sigma_i S_i^+ = \sqrt{2S' - \sigma_i a_i^\dagger a_i} \sigma_i a_i, \quad \sigma_i S_i^- = \sigma_i a_i^\dagger \sqrt{2S' - \sigma_i a_i^\dagger a_i}, \quad \sigma_i S_i^z = S' - \sigma_i a_i^\dagger a_i \quad (1)$$

$$\sigma_j S_j^+ = \sigma_j b_j^\dagger \sqrt{2S' - \sigma_j b_j^\dagger b_j}, \quad \sigma_j S_j^- = \sqrt{2S' - \sigma_j b_j^\dagger b_j} \sigma_j b_j, \quad \sigma_j S_j^z = -S' + \sigma_j b_j^\dagger b_j \quad (2)$$

によりハミルトニアンを変換し、 $1/S$  の0次以上を無視すると  $H^c = 2S' \sum_{\langle ij \rangle} J \sigma_i \sigma_j (a_i^\dagger a_i + b_j^\dagger b_j + a_i b_j + a_i^\dagger b_j^\dagger)$  を得る。ここで、 $S' \equiv S \langle \sigma_i \rangle_{av} = S(1-x)$  であり、 $\langle \dots \rangle_{av}$  は不純物の配置に関する平均を、 $x$  は不純物濃度を表わす。本来、 $S'$  の部分は  $S \sigma_i$  であるが、非磁性不純物のドーピングによりスピン数が減少することを考慮してすでに平均した量  $S \langle \sigma_i \rangle_{av}$  に置き換えた。正方格子上にある大きさ  $S$  のスピンを大きさ 0 のスピんで置換すると、 $S$ - $S$  間の交換積分  $J$  とその他の交換積分 0 がランダムにある状態となる。スピンと交換積分両方のランダム性を考慮しなければならない。サイト間の相互作用のみをもつハイゼンベルグ模型を考えるため交換積分のランダム性には Tahir-Kheli の2サイト近似の CPA [3][4] を適用し、サイトのランダム性は  $S$  を  $S'$  で置き換えることにより考慮する。

$G_{ll'}^c(t-t') \equiv \langle \langle \sigma_l a_l(t); \sigma_{l'} a_{l'}^\dagger(t') \rangle \rangle^c$  と  $F_{ml'}^c(t-t') \equiv \langle \langle \sigma_m b_m^\dagger(t); \sigma_{l'} a_{l'}^\dagger(t') \rangle \rangle^c$  で定義されるグリーン関数の運動方程式を導き、さらにそれにコヒーレントな交換積分  $J_p(\omega)$  を導入すると

$$\begin{pmatrix} (\omega - J_p S' z) \delta_{il} & -J_p S' \sum_\delta \delta_{j,l+\delta} \\ J_p S' \sum_\delta \delta_{i,m+\delta} & (\omega + J_p S' z) \delta_{jm} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} G_{ll'}^c(\omega) \\ F_{ml'}^c(\omega) \end{pmatrix} \\ = \begin{pmatrix} \sigma_l \delta_{ll'} \\ 0 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} S' \sum_\delta (J \sigma_l \sigma_{l+\delta} - J_p) \delta_{il} & S' \sum_\delta (J \sigma_l \sigma_{l+\delta} - J_p) \delta_{j,l+\delta} \\ -S' \sum_\delta (J \sigma_m \sigma_{m+\delta} - J_p) \delta_{i,m+\delta} & -S' \sum_\delta (J \sigma_m \sigma_{m+\delta} - J_p) \delta_{jm} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} G_{ll'}^c(\omega) \\ F_{ml'}^c(\omega) \end{pmatrix} \quad (3)$$

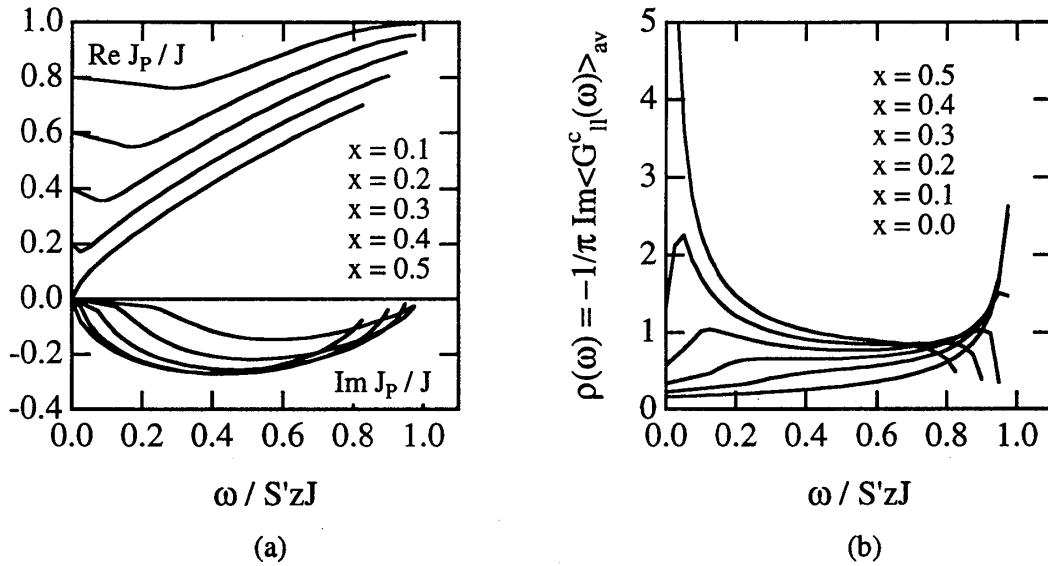


図1: (a) コヒーレントな交換積分の $\omega$ 依存性. 実部, 虚部どちらも上から $x=0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5$ である. (b) 状態密度の $\omega$ 依存性. 上から $x=0.5, 0.4, 0.3, 0.2, 0.1, 0.0$ である.

を得る。式 (3) は  $J_p$  に関する同じ項を両辺に加えることにより得られる。 $\delta$  は  $z$  個の最隣接格子へのベクトルである。式 (3) をマトリックス表示にすると  $\Gamma^{-1}g^c = \Lambda^c + V^c g^c$  となり、 $T$ -マトリックスを導入すると、 $g^c = \Gamma \Lambda^c + \Gamma T^c \Gamma \Lambda^c$ ,  $T^c = V^c + V^c \Gamma T^c$  となる。両式を不純物の配置に関して平均し、2 サイト近似の CPA の非散乱の条件式  $\langle T_{00}^c \rangle_{av} = \langle T_{10}^c \rangle_{av} = \langle T_{01}^c \rangle_{av} = \langle T_{11}^c \rangle_{av} = 0$  を適用すると、配置に関して平均されたグリーン関数と  $J_p(\omega)$  が次のように得られる。ただし、 $\gamma_{\mathbf{k}} \equiv z^{-1} \sum_{\delta} e^{i\mathbf{k} \cdot \delta}$  である。

$$\langle G_{ll}^c(\omega) \rangle_{av} = \frac{2}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\omega \langle \sigma_l \rangle_{av} + J_p S' z}{\omega^2 - (J_p S' z)^2 (1 - \gamma_{\mathbf{k}}^2)} e^{i\mathbf{k} \cdot (l-l')} \quad (4)$$

$$\frac{J_p(\omega)}{J} = 1 - \frac{2x}{1 + \Gamma_p(\omega)}, \quad \Gamma_p(\omega) \equiv \frac{2}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\omega^2}{\omega^2 - (J_p S' z)^2 (1 - \gamma_{\mathbf{k}}^2)} \quad (5)$$

$T = 0$  において式 (4) と (5) をセルフコンシステントに解くと、 $J_p(\omega)$  の実部と虚部、そして状態密度  $\rho(\omega) = -1/\pi \text{Im} \langle G_{ll}^c(\omega) \rangle_{av}$  の  $\omega$  依存性が得られる。図 1 (a) に  $J_p(\omega)$  の実部  $\text{Re} J_p/J$  と虚部  $\text{Im} J_p/J$  のエネルギー依存性を示す。 $\omega = 0$  近くで  $\text{Im} J_p$  が小さくなり、その小さい範囲は不純物濃度が増加すると狭くなるが  $\omega = 0$  では全濃度で零であることが分かる。図 1 (b) に状態密度の  $\omega$  依存性を示す。不純物濃度が増加すると  $\omega = 0$  付近の状態密度が増加し、低エネルギーの状態が大きく寄与していることが分かる。 $J_p$  が実数であるスピン波にダンピングのない場合を考え、 $J_p(\omega)$  を  $J_p(0)$  で近似する。この時、 $T = 0$  の相関関数は式 (4) のグリーン関数から簡単な形に求まり、その結果、副格子磁化  $m$  の不純物濃度依存性が  $m = (S + \frac{1}{2})(1 - x) - 0.696602$  と得られる。 $m$  が零となる臨界濃度  $x_c$  はスピン  $1/2, 1, 5/2$  においてそれぞれ  $x_c = 0.303, 0.536, 0.768$  である。一方、式 (5) より  $\omega = 0$  のとき  $J_p$  は不純物濃度依存性のみをもち、 $J_p(0)/J = 1 - 2x$  となる。 $J_p = 0$  をみたく濃度はパーコレーションの閾値  $x_p$  に相当する量と考えられ、すべての  $S$  で  $x_p = 0.5$  である。 $x_c$  と  $x_p$  を比較すると、 $S \geq 1$  のとき  $x_c > x_p$  であり、無限につながるパーコ

レーションパスが切れると同時にネール秩序も消えることが分かる。 $S = 1/2$  のときは  $x_c < x_p$  であり、 $x_c < x < x_p$  の濃度領域にパーコレーションパスはつながっているが長距離秩序のない状態がある。しかし、スピン波理論では臨界濃度以上の濃度の状態を議論できないので、次にこの状態を修正スピン波理論により調べる。

全副格子磁化零の条件を導入し、ハミルトニアン  $H^c = 2J \sum_{\langle ij \rangle} \sigma_i \sigma_j \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + \mu (\sum_{i \in A} \sigma_i S_i^z - \sum_{j \in B} \sigma_j S_j^z)$  を考える。このハミルトニアンをダイソン-マレーフ変換し、前と同様に  $J_p(\omega)$  を求めると、

$$\frac{J_p(\omega)}{J} = 1 - \frac{2x}{1 + \Gamma_p(\omega)}, \quad \Gamma_p(\omega) \equiv \frac{2}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\omega^2 - \lambda^2(1 - \eta)}{\omega^2 - \lambda^2(1 - \eta^2 \gamma_{\mathbf{k}}^2)} \quad (6)$$

を得る。この場合も  $J_p(\omega)$  が実数となる場合を考える。スピン波の励起スペクトルにギャップがあると、そのギャップ内のエネルギーで  $J_p(\omega)$  は実数となる。しかし、前節のスピン波の場合と  $J_p$  が同じふるまいをするのは  $J_p(\omega) = J_p(\lambda\sqrt{1-\eta}) = J_p(\sqrt{\lambda(-\mu)})$  の場合のみであるので、この場合を考える。 $J_p$  で表わされる一様な系に非磁性不純物が1つある状況を考えてみる。その不純物がA副格子にある場合、この系のグリーン関数を  $T$ -マトリックスで表わし、その  $T$ -マトリックスの分母が零となるエネルギーを求めると、 $\omega = \lambda(1 - \eta) = -\mu$  である。よって、このエネルギーに局在した状態があることになる。同様に、不純物がB副格子にあるときのそのエネルギーは  $\lambda$  である。 $\sqrt{\lambda(-\mu)}$  はこの2つのエネルギーの相乗平均となっているので、 $J_p(\sqrt{\lambda(-\mu)})$  が不純物濃度に対して単調減少するような物理的なふるまいをすることは局在した状態と関係しているのかもしれない。 $J_p$  を実の定数として  $T = 0$  の相関関数を求め、さらに副格子磁化零の条件を課すと  $m^2 \equiv \frac{1}{N} \sum_n (-1)^n \langle \sigma_0 \sigma_n \mathbf{S}_0 \cdot \mathbf{S}_n \rangle$  で定義される  $T = 0$  の長距離秩序はスピン波理論の結果と同じになる。 $x_c < x < x_p$  の濃度領域では励起スペクトルよりギャップがあることが分かる。

以上まとめると、非磁性不純物を含む正方格子のスピン  $S$  反強磁性ハイゼンベルグ模型で表わされる系をスピン波理論または修正スピン波理論とCPAを組み合わせるにより調べた。非磁性不純物で大きさ  $S$  のスピンを置換すると系の総スピン数は減少し、さらに相互作用するスピン対も減少する。この2つの効果を  $S$  を  $S(1-x)$  と置くことと、交換積分  $J\sigma_i\sigma_j$  をCPAで扱うことにより考慮した。また、簡単のためスピン波の励起スペクトルは実数でスピン波のダンピングがない場合を議論した。ネール状態の臨界濃度  $x_c$  とパーコレーションの閾値  $x_p$  を調べたところ、 $S \geq 1$  ではパーコレーションパスが切れると同時に磁化がなくなるのだが、 $S = 1/2$  においては  $x_c < x < x_p$  の濃度領域にパーコレーションパスはつながっているが磁化をもたない状態が存在し、またその状態はスピンギャップをもつことが分かった。このスピン  $S$  と  $x_c$ 、 $x_p$  の関係は  $\text{La}_2\text{Cu}_{1-x}\text{Mg}_x\text{O}_4$  と  $\text{K}_2\text{Mn}_{1-x}\text{Mg}_x\text{F}_4$  の実験結果と一致している。

## 参考文献

- [1] S-W. Cheong, A. S. Cooper, L. W. Rupp, Jr., B. Batlogg, J. D. Thompson and Z. Fisk, Phys. Rev. B 44 (1991), 9739.
- [2] S. J. Clarke and A. Harrison, J. Mag. Mag. Mater. 140-144 (1995), 1627.
- [3] R. A. Tahir-Kheli, Phys. Rev. B 6 (1972), 2826.
- [4] C. Yasuda and A. Oguchi, J. Phys. Soc. Jpn. 66 (1997), 2836.