高温における$S=1/2$交替鎖の非自明な動力学

大阪大学大学院 基礎工学研究科　物性物理科学分野　　沢 田 功

Nontrivial dynamics of the $S=1/2$ alternating chains at high temperatures

Isao Sawada, sawada@eagle.mp.es.osaka-u.ac.jp
Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka Univ.

要旨

激しい熱撹乱にさらされるスピン系の動力学は、熱力学とは異なり、決して自明ではない。高温における$S=1/2$交替鎖の緩和過程に、J_{AF}をスピンペアーの反強磁性的交換積分として、J_{AF}と$2J_{AF}$の良い散逸エネルギーを見出した。このモードはsingletからtripletへの局所的な一重、二重励起に対応する。極めて短距離のスピン相関が、わずかながらに生き残っていると思われる。

森公式における連分数解

森公式[1]とは、$PO\equiv[(O,A^\dagger)(A,A^\dagger)^{-1}]\,A$で定義される射影演算子$P$を用いて、運動方程式（今は、Heisenberg方程式）を変形したgeneralized Langevin方程式をいう。演算子$A(t)=\mathrm{e}^{\mathrm{i}Ht/\hbar}\,A\,\mathrm{e}^{-\mathrm{i}Ht/\hbar}, A=A(0)$に対する森公式は次の通り。

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}A(t)=\frac{\mathrm{i}}{\hbar}\,[H,A(t)]_-\;\equiv\;\mathrm{i}LA(t)\;=\;-\int_0^t\varphi_A(t-s)\,A(s)\,\mathrm{d}s\;+\;f_A(t). \tag{1}$$

但し、今は内積にカノニカル相関$(B(t),C)\;\equiv\;\beta^{-1}\int_0^\beta\langle\,B(t-\mathrm{i}\hbar\lambda)C\rangle\,\mathrm{d}\lambda-\langle B(t)\rangle\langle C^\dagger\rangle$をとる。系に内在した揺らぎ$f_A(t)\equiv\mathrm{e}^{(1-P)\,\mathrm{i}Lt}f_A,\;f_A=\dot{A}\equiv\mathrm{i}LA$がHeisenberg方程式とは異なる時間発展をするため、$f_A(t)$の記憶関数$\varphi_A(t)=(f_A(t),f_A^\dagger)(A,A^\dagger)^{-1}=(2\pi\mathrm{i})^{-1}\oint\mathrm{d}z\;\mathrm{e}^{zt}\;\overline{\varphi}_A(z)$については森による連分数解[2]が知られていた。

$$\overline{\varphi}_A(z)\;=\;\cfrac{\Delta_1}{z\;+\;\cfrac{\Delta_2}{z\;+\;\cfrac{\Delta_3}{z\;+\;\cdots}}}. \tag{2}$$

$\langle f_A(t)\rangle=0$を満たす、揺らぎの内積で表現できている記憶関数は、一般化された揺動散逸定理を記述しており、線形応答理論[3]に基づく緩和関数$\Xi_A(t)=(A(t),A^\dagger)(A,A^\dagger)^{-1}$と次の関係[1]をもつ。

$$\Xi_A(z)=\frac{1}{z\;+\;\overline{\varphi}_A(z)}. \tag{3}$$

$\Delta_n\equiv(f_n,\;f_n^\dagger)\,(f_{n-1},\;f_{n-1}^\dagger)^{-1}$は、隣接三項間漸化式$f_{n+1}\;=\;\mathrm{i}L\;f_n\;+\;\Delta_n\;f_{n-1}$、$f_0=A$、$\Delta_0\;=\;0$ [4, 5] を用いて表現でき、基底ベクトル$\{f_n\}$は散逸モードを決定する。動力学が静的な量$\{\Delta_n\}$で記述できることが特徴である。応用例は、電子ガス[6, 7], スピン系[8, 9, 10, 11, 12, 13, 14]、そして、強相関電子系[15, 16]に及ぶ。

高温極限における S=1/2 交替鎖 [17]

カノニカル相関 $(A(t), A^\dagger)$ は $T=\infty$ において自己相関関数 $\langle A(t)A^\dagger\rangle = \mathrm{Tr}\{1\,A(t)A^\dagger\}/\mathrm{Tr}\{1\}$ に収束する。S=1/2 交替鎖上の格子点 j にあるスピンペアーの z 成分、$A = S^z_{j,1} + S^z_{j,2}$、の緩和関数 $\Xi_A(t) = (2/\pi)\int_0^\infty \mathrm{d}\omega\ \cos\omega t\ \mathrm{Re}\ \Xi_A(-\mathrm{i}\omega^+)$、$\omega^+ \equiv \lim_{\epsilon\to 0^+}(\omega + \mathrm{i}\epsilon)$ を計算する。ハミルトニアンを

$$H \;=\; \mathrm{J_{AF}}\sum_i \boldsymbol{S}_{i,1}\cdot\boldsymbol{S}_{i,2} \;-\; \alpha\sum_i \boldsymbol{S}_{i-1,2}\cdot\boldsymbol{S}_{i,1} \tag{4}$$

と書く。添字1,2は格子点にある左右のスピンを表わし、$\mathrm{J_{AF}}$ がそのスピンペアーの反強磁性的交換積分である。今後、$\mathrm{J_{AF}}$ をエネルギーの単位にとる。先の漸化式を用いると、$T=\infty$ ではαの奇数次の寄与はなく（つまり、交替性の種類は識別されず）、$a = S(S+1)\hbar^2/3$ として次を得る。

$$\Delta_1 = 2a\alpha^2,\quad \Delta_2 = 4a + 2a\alpha^2,\quad \Delta_3 = 3a\frac{4+3\alpha^2}{2+\alpha^2}. \tag{5}$$

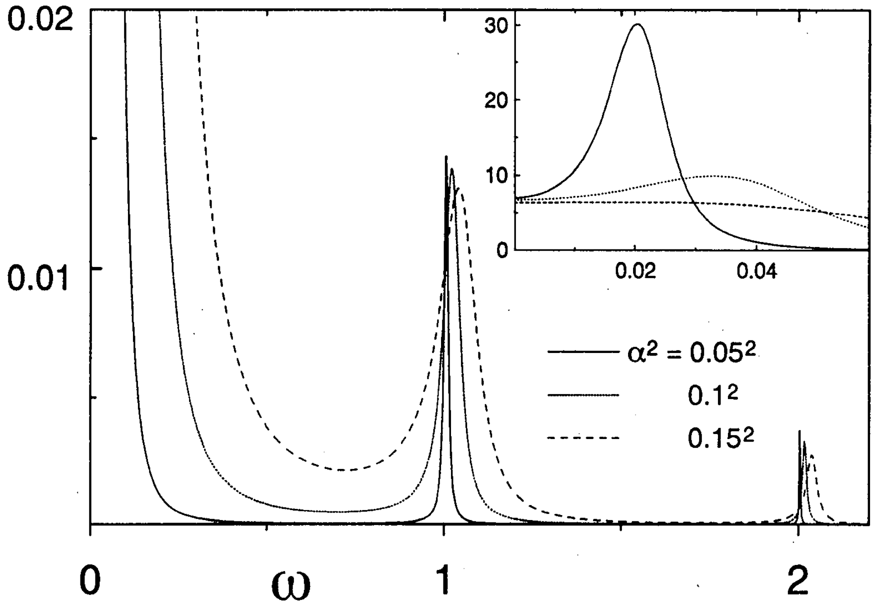
(A)　$\alpha^2 \ll 1$ の時、

$$\Delta_4 = a\Big(6+\frac{91}{12}\alpha^2\Big),\quad \Delta_5 = a\Big(4+\frac{299}{12}\alpha^2\Big),\quad \Delta_6 = \frac{2393}{24}a\alpha^2,\quad \Delta_7 = \frac{591592}{28716}a \tag{6}$$

となり、$\Delta_{n\ge 8} = \Delta_7$ の近似と (3) を用いて、$\hbar = 1$ の単位系で $a = 1/4$ より、

$$\Xi_A(z) \;=\; \frac{z(z^4+5z^2+4)}{z^2(z^4+5z^2+4)+f(z,\alpha)} \tag{7}$$

を得る。ここで、$f(z,\alpha) \propto \alpha^2$、$z^4+5z^2+4 = (z-2\mathrm{i})(z-\mathrm{i})(z+\mathrm{i})(z+2\mathrm{i})$ に注意しよう。$\Delta_{n\ge 8} = \Delta_7$ の近似が、下図に示すように、各 peak の半値幅 $\simeq |\alpha|$ とエネルギー散逸を生む。



$|\alpha| = 0.05, 0.1, 0.15$ に対する $(1/\pi)\ \mathrm{Re}\ \Xi_A(-\mathrm{i}\omega^+)$

Re $\Xi_A(-i\omega^+)$ には、原点中心の Lorentian-like な散乱 peak 上に、$|\omega| \simeq |\alpha/2|$, 1, 2 が中心のよい散乱 peak が出現する。これは、$\alpha = 0$ で (4) の保存量であった A による Re $\Xi_A(-i\omega^+) = \pi\ \delta(\omega)$ が $|\alpha|$ の増加で幅をもつと同時に、$\{\Delta_n\}$ におけるΔ_6の急激な落ち込みが新たな 3 つの peaks を生んだと解析できる。一方、散逸モードを特徴付ける $\{f_n\}$ から、格子点 j に孤立したエネルギーが、2 格子点 $(j-1, j)$, $(j, j+1)$、3 格子点 $(j-2, j-1, j)$, $(j-1, j, j+1)$, $(j, j+1, j+2)$ 内において singlet から triplet への局所的な一重 $[1 = 1/4 - (-3/4)]$、二重励起によって費やされていることが期待できる。また、それらの散乱強度は $\omega \simeq 0$ の強度に対し $O(0.01)$ である。したがって、この系においては極めて短距離のスピン相関が、わずかながらに存在していると思われる。

以上の自己相関関数は中性子散乱強度 $S(\omega) = \sum_q S(q,\omega)$ を再現する。高温において波数 q 依存性が無視できれば、ラマン散乱強度 $I(\omega)$ も同様の振る舞いを示すであろう。$T \sum_q \mathrm{Im}\ \chi(q,\omega)/\omega = \mathrm{Re}\ \Xi_A(-i\omega^+)$ が高温では成立するのだが、低振動数付近の振る舞いは $\Delta_{n\geq 8} = \Delta_7$ の近似の影響を強く受けるため、NMR 緩和率 $1/T_1$ の議論には適さない。モデル物質は $\alpha = -0.54$ の $(CH_3)_2CHNH_3CuBr_3$ [18] である。

(B) $\alpha^2 \gg 1$ の時には、

$$\Delta_4 = a\Big(\frac{20}{3}\alpha^2 + \frac{179}{18}\Big), \qquad \Delta_{n\geq 5} = O(\alpha^2) \tag{8}$$

となり、Re $\Xi_A(-i\omega^+)$ には、$|\omega| \simeq 0$, $|\alpha|$ が中心の散乱 peak (半値幅 $\simeq |1/\alpha|$ は $\Delta_{n\geq 5} = \Delta_4$ の近似により生じる。) が同程度の強度で出現する。$|\alpha| \to \infty$ において、Re $\Xi_A(-i\omega^+) = (\pi/4)(\ \delta(\omega \pm |\alpha|) + 2\ \delta(\omega)\ )$ に収束する。

$\alpha = 0$ おいて $\langle A(t)A\rangle/\langle A^2\rangle = 1$ であった緩和関数 $\Xi_A(t)$ は交替性、つまり、有限の α によって $\pm\exp(-t/\tau)$ の包絡線を持って減少し始める。そして、$\alpha^2 \gg 1$ の領域で $+\exp(-t/\tau')$ の包絡線を持つ振る舞いを経て、$(1 + \cos\alpha t)/2$ に収束する。

まとめ

連分数解を用いて高温極限における S=1/2 交替鎖の動力学を調べた。(A)、(B) 共に、$\{\Delta_n\}$ の振る舞いに、ある次数 l [(A) で $l = 6$, (B) で $l = 3$] で一時的な鋭い減少が見られた。こうした $\Delta_l = 0$ 様の傾向が、一様なスピン鎖にない、交替鎖の特徴であり、上述の Heisenberg 模型に限らず、XY 模型や Ising 模型 [17] でも、$A = S^z_{j,1} + S^z_{j,2}$の動力学に見出される。(A) $\alpha^2 \ll 1$ の Heisenberg 模型で、高温における非自明な動力学の一例を与えた。

References

[1] H. Mori, Prog. Theor. Phys. **33**, 423 (1965).

[2] H. Mori, Prog. Theor. Phys. **34**, 399 (1965).
連分数解と等価な closed-form 解は J. Okada, I. Sawada and Y. Kuroda: J. Phys. Soc.

Jpn. **64** (1995) 4092, I. Sawada: J. Phys. Soc. Jpn. **66** (1997) 2218 and references therein.

[3] R. Kubo, J. Phys. Soc. Jpn. **12**, 570 (1957).

[4] M. H. Lee, Phys. Rev. B **26**, 2547 (1982).

[5] M. H. Lee, Phys. Rev. Lett **49**, 1072 (1982).

[6] M. H. Lee and J. Hong, Phys. Rev. Lett. **48**, 634 (1982).

[7] J. Hong and M. H. Lee, Phys. Rev. Lett. **70**, 1972 (1993).

[8] M. H. Lee, I. M. Kim, and R. Dekeyser, Phys. Rev. Lett. **52**, 1579 (1984).

[9] J. Florencio, Jr. and M. H. Lee, Phys. Rev. B **35**, 1835 (1987).

[10] C. Lee and S. I. Kobayashi, Phys. Rev. Lett. **62**, 1061 (1989).

[11] S. Sen, Proc. R. Soc. Lond. A **441**, 169 (1993).

[12] V. S. Viswanath and G. Müller, *The Recursion Method*, Lecture Notes in Physics, New Series m23, (Springer, Berlin, 1994).

[13] S. Sen, Physica A **222**, 195 (1995).

[14] S. Sen and T. D. Blersch, Physica A **253**, 178 (1998).

[15] J. Hong and H.-Y. Kee, Phys. Rev. B **52**, 2415 (1995).

[16] H.-Y. Kee and J. Hong, Phys. Rev. B **55**, 5670 (1997).

[17] I. Sawada, preprint.

[18] H. Manaka and I. Yamada, J. Phys. Soc. Jpn. **66**, 1908 (1997).