

MnO, MnS のマグノンサイドバンド

阪大基礎工 望 月 和 子
原 田 勲

MnF₂ で magnon sideband が実験的に見出されて以来, magnon を伴う光吸収の研究が理論, 実験の両面から盛んである。two-magnon 吸収や magnon sideband は MnF₂ に限らず, ほとんどの反強磁性体でも同じように観測されるはずであるが, まだ実例はそんなに多くは示されていない。Huffman は MnO, MnS で M_n^{2+} イオンの光吸収の測定を行なった。彼の実験結果では zero magnon line と magnon sideband が分離されているわけではないが, 観測された ${}^6A_{1g} \rightarrow {}^4T_{1g}$, ${}^6A_{1g} \rightarrow {}^4T_{2g}$ 遷移の oscillator strength が $10^{-3} \sim 10^{-4}$ で非常に大きいことを, その温度変化が低温側から Néel 点に近づくとき T_N 近傍で急激に増加し, T_N 以上では変化が非常にゆるやかであることから, 我々は Huffman の観測した光吸収を magnon sideband と考えて, 強度の温度変化を計算した。第一には特に Néel 点近傍に注目し, Pair 近似を用いておこなった強度の計算についてのべる。第二には特に温度の低い所に注目して Spin Wave 近似で magnon sideband を議論する。

§ 1 Pair 近似

magnon sideband の強度は effective spin dependent dipole moment, P_{ab} , の initial state と final state の間のマトリックス・エレメントの二乗に比例する。initial state では a, b イオンが共に ${}^6A_{1g}$ 状態にあり, final state では b イオンは ${}^6A_{1g}$ 状態に, a イオンは ${}^4T_{1g}$ 状態に励起されている。各イオンのスピンを考慮すると, initial, final state は 36 個, 24 個のスピン状態に分れる。これらのスピン状態をそれぞれ i_n , f_n とかけば, i_n についての Boltzmann 分布を考慮して, magnon sideband の強度は

$$I(a^*b) = \sum_{i_n} \sum_{f_n} |\langle f_n | P_{ab} | i_n \rangle|^2 e^{-\frac{\epsilon(i_n)}{kT}} / \sum_{i_n} e^{-\frac{\epsilon(i_n)}{kT}}$$

の形に書ける。ここでは Pair 近似を用いて状態 i_n を求める。

MnO , MnS は第二種の反強磁性体であるから, 三種類の Pair を考える必要がある。即ち

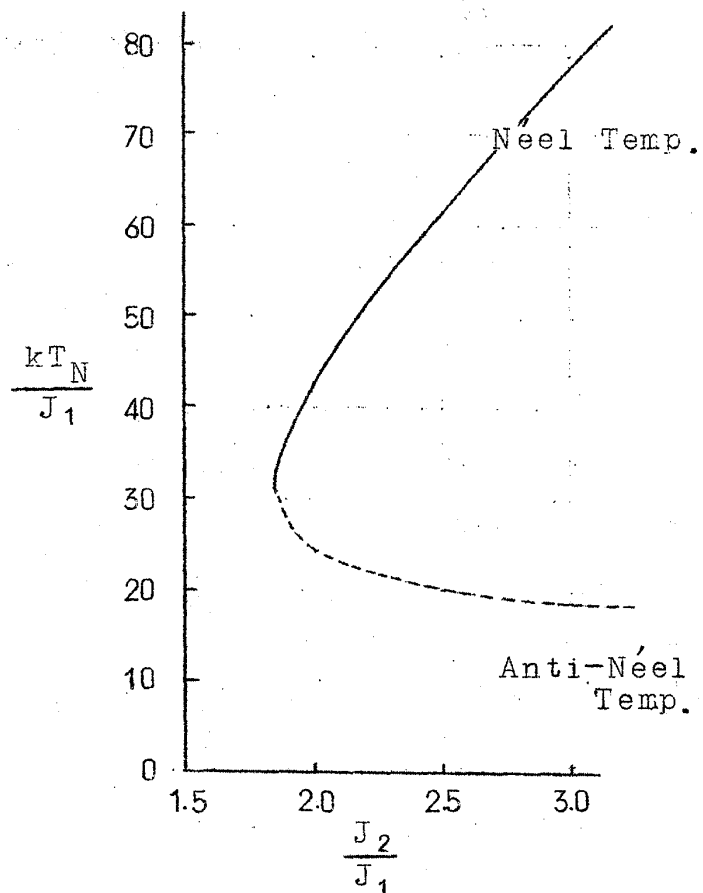
- Pair 1 : nearest neighbor pair でスピンの平行のもの
- Pair 2 : nearest neighbor pair でスピンの反平行のもの
- Pair 3 : next nearest neighbor pair (スピンは反平行)

Pair を作っているスピン間の交換相互作用はなまにとり, Pair 以外の周りのスピンとの交換相互作用を分子場の形でとり入れる。三種の Pair に対するそれぞれの分子場は温度の関数として self-consistent に決める。Néel 温度はこれらの分子場が 0 になる温度として求め, その結果を第 1 図に示す。

n.n. 間の交換相互作用定数を

J_1 , r.n.n. 間のそれを J_2 とすると $J_2/J_1 \lesssim 1.85$ では Néel 点は存在しない。即ちこのような領域では f.c.c. 構造の第二種のスピン配列が安定でないことを示している。第 1 図の実線は Néel 温度, 点線は anti-Néel 温度をあらわす。

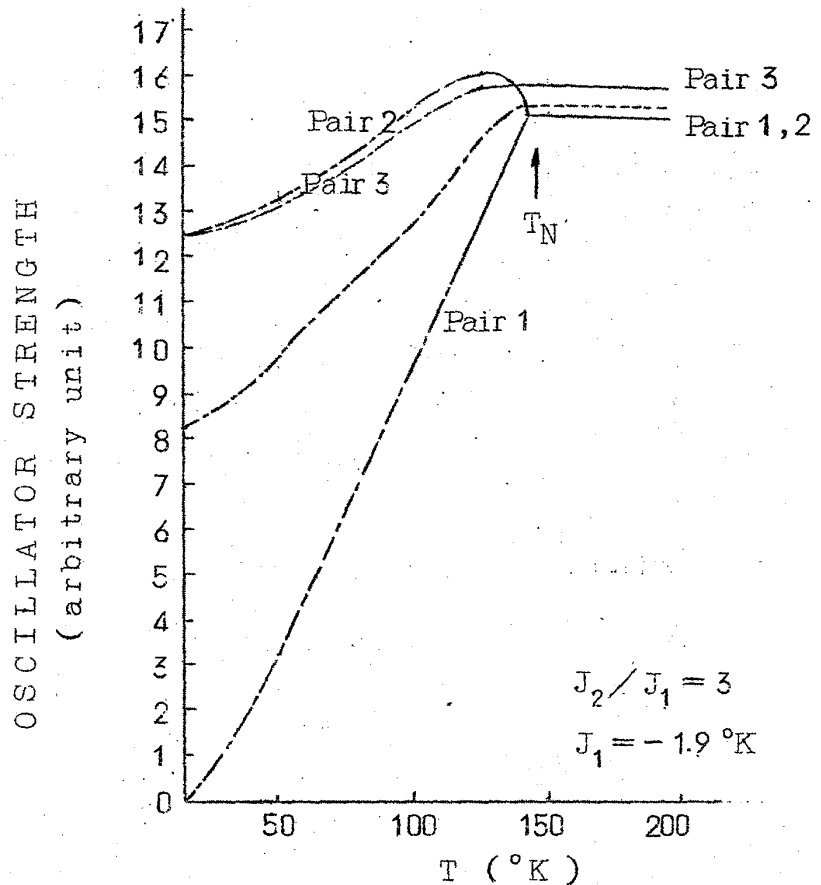
$J_2/J_1 \sim 3$ でも anti-Néel 点は Néel 点の $\frac{1}{4}$ の辺りに生じるので, 我々の Pair 近似は Néel 点の近傍を除いた低温側では使えない。以下の計算では $J_1/J_2 = 3$ ととり, J_1 は Néel 点の実測値を与えるようにえらぶ。Pair 1 のスピン状



第 1 図

態 i_n は容易に求まるが, Pair 2, 3 のスピン状態は数値的に解いて求める。magnon sideband の強度の温度依存性は initial state でのスピン状態についての Boltzmann 分布の効果と, 分子場の温度変化の効果から生じる。第 2 図に三種の Pair に対する強度の温度変化の計算結果を実線で示す。

Pair 1 では強度は T_N 以下で著しく減少する。またこれは 0°K では 0 になることが示される。Pair 2, 3 では T_N 直下で僅かに増加し, あとは 0°K で残る有限な値 (第 2 図のスケールでは ~ 12.5) に向つてゆるやかな温度変化を示す。点線は Pair 1, 2, 3 に対するものの平均値で, Néel 点の上では温度変化が非常に少く, Néel 点の下で急激に減少する傾向を示し, Huffman の実験結果を定性的に説明



第 2 図

することができた。鎖線で書いた部分は計算が完全に終わっていないので, 予想図である。

§ 2 Spin wave による扱い

f. c. c. lattice の第二種反強磁性スピン構造は, $Q = \frac{\pi}{a} [111]$ (a は格子常数) の screw 構造として取扱うと簡単である。spin wave frequency は

$$\hbar\omega_k = 2S\sqrt{[D - J(k) + J(Q)][J(Q) - J(k+Q)]}$$

で与えられる。 $J(\mathbf{k})$ は交換相互作用定数のフーリエ交換, $D(>0)$ は(111)面を容易面とする一軸性異方性エネルギーの定数である。spin wave の linear な項だけを残す近似では effective dipole moment P_{ab} の a , b についての和は次のような形に求まる。

$$\sum_{a,b} P_{ab} = \frac{\sqrt{2S}}{4} \sum_{\mathbf{k}} \left[\pi(\mathbf{k}) (a_{\mathbf{k}} A_{\mathbf{k}}^* + a_{\mathbf{k}}^* A_{-\mathbf{k}}^*) \right. \\ \left. + \pi(\mathbf{k}+\mathbf{Q}) (a_{\mathbf{k}} A_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}}^* - a_{\mathbf{k}}^* A_{-(\mathbf{k}+\mathbf{Q})}^*) \right]$$

$A_{\mathbf{k}}$, $a_{\mathbf{k}}$ は exciton, spin の annihilation operator のフーリエ成分。 $\pi(\mathbf{k})$ は

$$\pi(\mathbf{k}) = \sum_b \Pi(a^* b) e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_{ba}}$$

で, 結晶の対称性を考慮して次の形に求まる。x-polarization を考えることにすれば, $|^4T_{1z}\rangle$ への遷移に対しては

$$\pi(\mathbf{k}) = 2i \left[2\pi^{(1)} \left(\sin \frac{k_y a}{2} \cos \frac{k_x a}{2} + \sin \frac{k_y a}{2} \cos \frac{k_z a}{2} \right) \right. \\ \left. + \pi^{(2)} \sin k_y a \right],$$

$|^4T_{1y}\rangle$ への遷移に対しては

$$\pi(\mathbf{k}) = 2i \left[2\pi^{(1)} \left(\sin \frac{k_z a}{2} \cos \frac{k_y a}{2} + \sin \frac{k_z a}{2} \cos \frac{k_x a}{2} \right) \right. \\ \left. + \pi^{(2)} \sin k_z a \right],$$

$|^4T_{1x}\rangle$ への遷移に対しては $\pi(\mathbf{k}) = 0$ となる。 $\pi(\mathbf{k})$ の形から zone

boundary の K 点 ($\mathbf{k} = \frac{1}{a} (\frac{3\pi}{2}, \frac{3\pi}{2}, 0)$) の magnon が side band に主と

して寄与することが分る。この magnon energy は MnO では 99.6 cm^{-1} ,

MnS では 120.5 cm^{-1} と求まる。但し MnO では $J_1 = 5^\circ\text{K}$, $J_2 = 5.5^\circ\text{K}$,

MnS では $J_1 = 3.5^\circ\text{K}$, $J_2 = 6.3^\circ\text{K}$ の値を用いた。Huffman は Oscillator

strength の低温の温度変化を $f = f_0 \coth \left(\frac{\hbar \omega_0}{2kT} \right)$ の関係式を用い

CoF₂による光のラマン散乱
て解析し、MnO では $\omega_0 \sim 110 \text{ cm}^{-1}$, MnS では $\omega_0 \sim 135 \text{ cm}^{-1}$ の値を得て
いるが、これらの値は我々の上に求めた magnon energy と order 的によく
一致している。強度の温度変化のくわしい計算は現在進行中である。

反強磁性 CoF₂ の中の Magnon, Excitons 及び それらによるラマン散乱の理論

東大・物性研 石川 章 夫

1 Co^{2+} イオンは化合物の中でもその軌道縮重を消失していないのが特徴で、
それ故 Co^{2+} イオンを含む化合物は磁気異方性の問題でしばしば取り上げられて
来た。CoF₂ はその1種であり、又いわゆる鉄族弗化物 (MnF₂, FeF₂,
CoF₂, NiF₂ 全てイオン結晶、ルチル型結晶構造、反強磁性) の一員として
も他にない特色を持っている。

中性子回折の実験からスピン軸は正方対称軸の c 軸方向に平行であり、ネー
ル点は 37.7°K, AFMR peak は 37 cm^{-1} , 感受率 $\chi_{\parallel}(T)$, $\chi_{\perp}(T)$ の測
定は Stout 達によつてなされ、又 Cowley 達⁴⁾ によつて Magnon や Excit-
ons の Dispersion Curves が測定されている。

2 Co^{2+} イオンの軌道縮重が消失していないので、いわゆる Spin Hamil-
tonian Approach はあてはまらず、Effective Hamiltonian Approach
でなくてはならぬ。Nakamura-Taketa, Lines は $S = 3/2$ の Spin Ham-
iltonian で、Kamimura-Tanabe, Kamimura, Gladney は $S = 3/2$,
L=1 の Effective Hamiltonian で Co^{2+} イオンの電子状態を解析してい
る。Kamimura と Lines は fictitious spin $S = 1/2$ の Anisotropic
Exchange interaction で Spin Wave (Magnon) を論じ感受率を計算し
ている。我々 (Ishikawa-Moriya¹⁾) は Co^{2+} イオン間の Superexchange
interaction を $S = 3/2$ の Heisenberg 型で表わし、Magnon の他に更に