

量子スピン系での ESR の line - shape の磁場、温度変化

大阪大学大学院 理学研究科 小笠原 章, 吉野 太郎, 宮下 精二

有限サイズの量子スピン系において、系の Hamiltonian を対角化し、Kubo 公式を直接的に評価することによって、吸収曲線 (帯磁率の周波数依存性) を求める方法を開発してきたが、今回はこの量子論的手法を反強磁性体に適用し、イジング異方的相互作用をもつ場合に、与えられた周波数に対して複数の共鳴磁場が現れることを確認し、古典論としての反強磁性共鳴理論の結果との比較を行った。また、双極子相互作用に基づく異方性は常磁性共鳴に相当する共鳴の幅を大きくする効果を持つが複数の共鳴磁場を生じさせないことがわかった。

スピン間相互作用の強い系の ESR における、共鳴磁場のシフトを記述する理論として従来より様々な理論が提唱され、実験結果との比較が行われて来た。Nagamiya [1], [2] は反強磁性共鳴理論において、反強磁性古典スピン系における共鳴条件 (共鳴周波数) を、系を互いに反平行な 2 つの副格子に分割し、それらの磁化 $\vec{M}^\pm$ の相互作用の満たす方程式を解くことによって求めた。Kanamori, Tachiki [3] は、系の状態を表す (全系の) 磁気モーメント $S^\pm$ の満たす方程式を解くことによって共鳴周波数を求めた。Nagata, Tazuke [4] は、この結果を用いて 1 次元反強磁性体 ($\text{CsMnCl}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) における共鳴磁場の温度依存性を再現した。また、Natsume [5] は Kubo 公式を近似的に評価する方法で共鳴磁場の温度依存性を求めている。我々は Kubo 公式:

$$\chi''_{xx}(\omega) = \frac{1}{2} (1 - e^{-\beta\omega}) \int_{-\infty}^{\infty} \langle M^x(0) M^x(t) \rangle e^{-i\omega t} dt$$

を直接数値的に評価する方法 [6] を開発してきたが、今回その方法を用いて反強磁性体における共鳴磁場の磁場 (静磁場)、温度依存性を調べる。その結果、スピン相互作用における異方性に基づく反強磁性共鳴理論において、複数の共鳴磁場が連立方程式の解として得られる、即ち、吸収曲線においてピークの複数化が生じる、という古典論における結果が、Kubo 公式を直接的に評価する量子論的手法において再現されることを確認した。また、得られた吸収曲線における、ピーク位置 (共鳴磁場) に関して、系のエネルギー準位からの解析を試み、イジング異方性と双極子相互作用で低エネルギー準位の構造が異なることを見出した。系の Hamiltonian として、

$$H = -2J \sum_{\langle i,j \rangle} [S_i^x S_j^x + S_i^y S_j^y + A S_i^z S_j^z] - h \sum_i S_i^z + D \sum_{\langle i,j \rangle} \frac{1}{r_{ij}^3} \left[\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j - \frac{3}{r_{ij}^2} (\vec{S}_i \cdot \vec{r}_{ij}) (\vec{S}_j \cdot \vec{r}_{ij}) \right]$$

を採用する。ここで第 1 項がスピン相互作用、第 2 項が Zeeman 項、第 3 項が双極子相互作用を表している ($h = g\mu_B H_0$, μ_B : Bohr 磁子, H_0 : 静磁場, $\vec{r}_{ij}$: 格子ベクトル, $D = (e^2/4\pi\epsilon_0)^2$, A : イジング異方性: $A \geq 1.0$)。今回は、1 次元反強磁性 1 軸性 (Ising-like) Heisenberg 模型 ($J_z = JA = -1.0$, $N = 8$, 周期境界条件) を調べる。ここでは静磁場 (外部磁場) H_0 が 1 次元鎖方向に垂直にかかり、振動磁場 H_1 が 1 次元鎖方向に平行にある幾何学的配位をとる。以下では、イジング異方性 A 、双極子相互作用 ($\propto 1/r_{ij}^3$) の 2 つの異方性パラメータに対しての依存性を調べる。但し、以下においては、単位系として $g\mu_B/\hbar = 1$ 即ち、常磁性共鳴においては、共鳴磁場 H_R と周波数 ω との間に $H_R = \omega$ の関係が成り立つ単位系を採用する。

振動磁場 H_1 の振動数 $\omega = 1.0$ の場合の結果を示す。先ず、吸収曲線の、イジング異方性 A に対する依存性を観る。そのため、双極子相互作用の大きさは一定で考える ($r_{ij} = 3.0$)。等方的な Heisenberg 模型 ($A = 1.0$) 即ち、双極子相互作用に基づく異方性のみが系に作用している場合について吸収曲線を示す (図 1)。図 1 において、吸収曲線は基本的に常磁性共鳴磁場 ($H = \omega = 1.0$) を中心とした single peak を形成している。それぞれの温度におけるピークの線幅 ΔH は、双極子項に起因しており、その温度依存性は温度が相互作用の程度 ($T \sim |J| = 1.0$) の場合最大になり、低温、高温共に減少することがわかった。次に、 $A \geq 1.0$ 即ち、イジング異方的な場合 ($A = 2.0$)

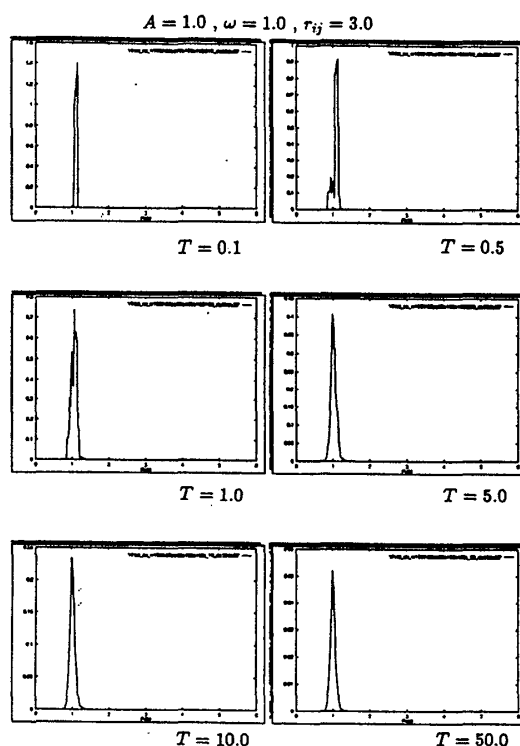


図 1: $A = 1.0$, $\omega = 1.0$, $r_{ij} = 3.0$ における吸収曲線の温度変化: 左上から右下にかけて順に $T = 0.1, T = 0.5, T = 1.0, T = 5.0, T = 10.0, T = 50.0$

について吸収曲線を示す (図 2)。イジング異方性の増大に伴って、図 1 ($A = 1.0$) の常磁性共鳴に相当する single peak に加えて、satellite peak を生じることがわかった。この傾向は異方性を大きくすると共に顕著になり、イジング異方性の極限 (相互作用の x, y 成分が 0) では、複数個のデルタ関数的なピークが現れる。また、吸収曲線の、双極子相互作用に対する依存性を観る。ここでは、スピン間距離 r_{ij} を図 1 での値から減少させ ($r_{ij} = 3.0 \rightarrow 2.0$)、双極子相互作用に基づく異方性を相対的に増大させた場合の吸収曲線を示す (図 3)。ここでは $A = 1.0$ 、つまり純粋に双極子相互作用のみに基づく異方性の作用を観る。図 3 ($r_{ij} = 2.0$) における吸収曲線を、図 1 ($r_{ij} = 3.0$) と比較すると、基本的には、常磁性共鳴磁場 ($H = \omega = 1.0$) を中心とした single peak を形成しているが、その線幅に増大が生じている。また、この傾向はイジング異方性を増大させた場合においても認められ、吸収曲線を形成する複数のピークがそれぞれ分散した。

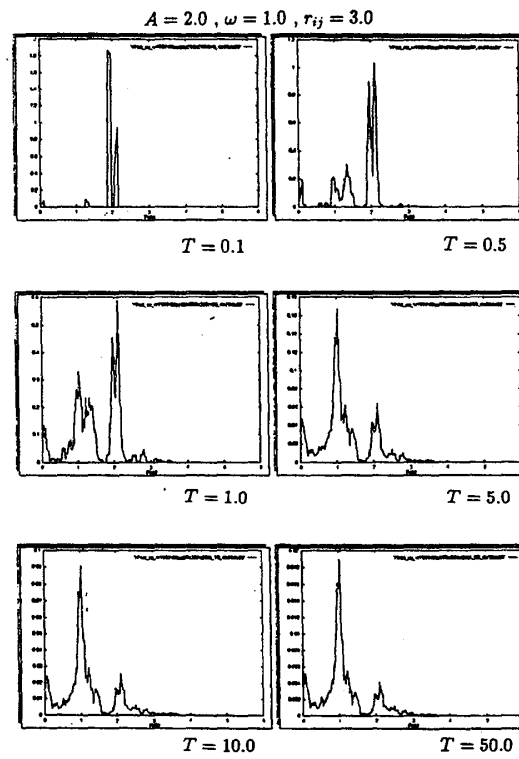


図 2: $A = 2.0, \omega = 1.0, r_{ij} = 3.0$ に於ける吸収曲線の温度変化

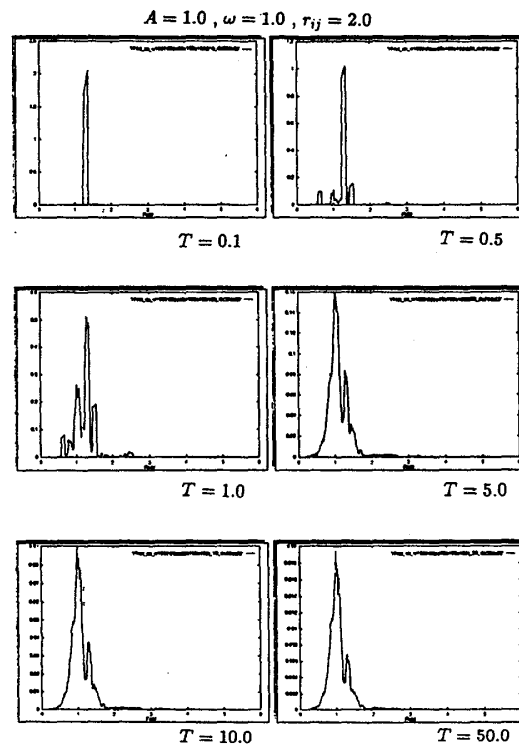


図 3: $A = 1.0, \omega = 1.0, r_{ij} = 2.0$ に於ける吸収曲線の温度変化

以上の様に、 $A = 1.0$ における吸収曲線は常磁性共鳴に相当する single peak によって形成されていたが、イジング異方性の増大に伴い、それに加えて、satellite peak を生じる (ピークの複数化)、という傾向が認められた。ここでは、エネルギー準位¹を描き、それらの定性的な振る舞いを観ることによってこの結果を解析する。

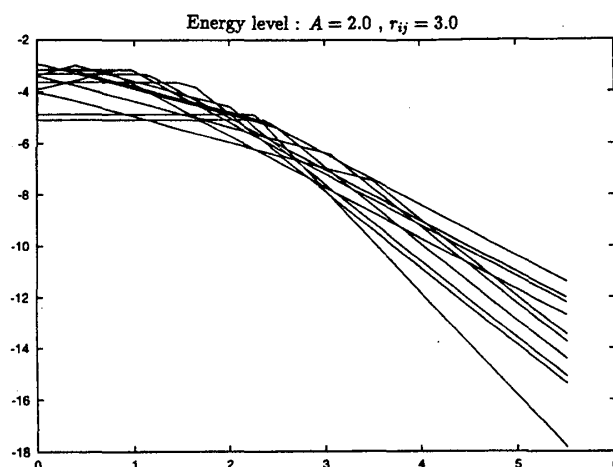


図 4: $A = 2.0$, $r_{ij} = 3.0$ におけるエネルギー準位

図 4 ($A = 2.0$) において、低磁場 ($H \ll 1.0$) においては $S = 0$ (S : total spin) の状態が基底状態をなしており、第 1~3 励起状態は $S = 1$ の状態によって占められている。 $S = 1$ の空間に属する 3 つの状態 ($S_z = 1, 0, -1$)² 間におけるエネルギーギャップに関して、 $S_z = 1 \sim S_z = 0$ 間 ($\Delta E_{1,0}$)、 $S_z = 0 \sim S_z = -1$ 間 ($\Delta E_{0,-1}$) の両者に関して、等しいギャップを与える磁場の値が一致しない。このことは、対応する図 2 において、吸収曲線が、常磁性共鳴磁場 ($H = \omega = 1.0$) におけるピークに加えて、 $H_0 = 0.0, 2.0$ 付近において複数の satellite peak を形成していること (ピークの複数化) を、遷移の概念の下に説明する ($\Delta E_{1,0} = \omega = 1.0$ at $H_0 \simeq 0.0$, $\Delta E_{0,-1} = \omega = 1.0$ at $H_0 \simeq 2.0$)。

参考文献

- [1] T.Nagamiya, Prog. Theor. Phys. 6 (1951), 342,350.
- [2] T.Nagamiya, Prog. Theor. Phys. 11 (1954), 309.
- [3] J.Kanamori, M.Tachiki, J. Phys. Soc. Jpn. 17 (1962), 1384.
- [4] K.Nagata, Y.Tazuke, J. Phys. Soc. Jpn. 32 (1972), 337.
- [5] Y.Natsume *et al*, J. Phys. Soc. Jpn. 48 (1980), 50.
- [6] S.Miyashita, T.Yoshino and A.Ogasahara, J. Phys. Soc. Jpn. 68 (1999), 401.

¹磁場に対して、基底状態から数えて 16 固有状態の固有値

²但し、系の Hamiltonian は双極子相互作用 (2 次) が摂動として考慮されているので、それぞれの固有状態 S 、 S_z は、もはや、保存数ではなく整数ではないので、上記及び以下において用いる、状態 S 、 S_z は、双極子相互作用の存在しない場合における値とする。