

ドナー間の磁氣的相互作用

青学大・理工 大 畠 永 生

約10年前 Jérôme と Winter は、 S_i 中のドナー間の交換相互作用が反強磁性的であることを、直接実験的に確かめた。ここで我々は、そのようなドナー間の磁氣的相互作用を、簡単な模型を使って、その代り電子相関は完全に取り入れて、考えてみたい。金属の類似の問題は、Anderson model と Wolff model に基いて RPA の範囲で多くの人々によって論じられている。

今、ドナー型不純物原子2個を含む結晶内に、電子を2つだけ考えよう。但し簡単のため、不純物原子の束縛状態は唯1つに限ると仮定する。ところで、2電子系の基底状態は一重項であることが Lieb-Mattis の定理によって保証されている。ということはドナー間の磁氣的相互作用がいつでも反強磁性的ということなのか？ 必ずしもそうではない。何故ならば、基底状態である一重項のエネルギーが電子間のクーロン斥力によって上って行って、最低の三重項の状態と縮退するかも知れないからである。

もう少し具体的に考えてみよう。2つの不純物原子間の距離が近い時、それぞれの原子に局在している電子軌道は重なり合って、結晶の基底状態として結晶内に水素様分子が形成されるであろう。この分子は有限の大きさの電子間クーロン斥力によってイオン化されることがあり得るだろうか？ もしそうなら、1つの電子は結晶内を動き回ることができ、もう1つの電子のみが不純物原子のまわりにとらえられ、水素分子イオンが形成されるだろう。不純物原子のポテンシャルがもっと深くなると、電子軌道は各原子のまわりによりよく局在して、重なり合いは小さくなる。ポテンシャルが深くなった極限では、基底状態は確かに1重項である（孤立した水素分子を考えればよい）。この電子スピンの反強磁性的結合は、ポテンシャルの強さを段々と弱めて行く時、常に安定なのであるだろうか？ これ等2つの間が肯定されるならば、我々はポテンシャルの深さが適当である時に、ある強さのクーロン斥力で系は非磁性状態から磁性状態に転移するであろうということを期待してよい。

この問題を考えるには、まず、2個の不純物原子を含んだ結晶内の1電子状態と、電

子間相互作用を考慮に入れない時の2電子状態を頭に入れて置かなければならない。1電子状態は、よく知られているように、波動函数が適当に選んだ原点に関して対称か反対称かによって2種類に分れる。対称な状態は、エネルギー的に一番下に束縛状態が存在し、その上に有限の距離はなれて散乱状態が連続的に分布している。ところが、反対称の状態について言えば、ポテンシャルの深さ v がある値 v_c を越えない限り、束縛状態は現われない。従って、電子間相互作用を考えに入れない時の2電子系の基底状態は、対称的束縛状態に2電子を(当然スピンを反平行にして)置いたものである。第1励起状態は、1電子を対称的束縛状態に、他の電子を最低散乱状態($v < v_c$)か、反対称束縛状態($v > v_c$)に置いたものである。第1励起状態には1重項と3重項がある。1重項状態は2電子の相対座標に関して偶であるが、3重項状態は奇である。従って、電子間のクーロン斥力は1重項状態のエネルギーを持ち上げるが、3重項状態にはそれ程影響しない。こうして、問題は、基底状態の1重項が電子間のクーロン斥力によって持ち上げられて、すぐ上の3重項状態と「事実上」縮退してしまうことが有り得るかどうかということである。

具体的な計算を簡単にするために、結晶を1次元にし、電子はすぐ隣の格子点にだけとび移れるとする。更に、不純物原子のポテンシャルも。電子間の相互作用も δ 函数的であるとする。2つの不純物原子が隣合っている場合の結果を図に示す。

図の横軸はポテンシャルの深さ、縦軸は電子間相互作用の強さである。図中実験の上方の領

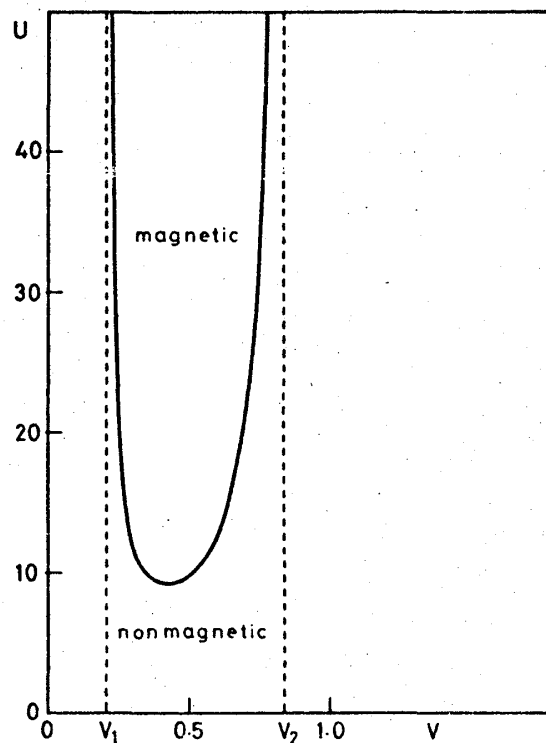


図 1

域では、ドナー対は電子間のクーロン斥力によってイオン化され、水素分子イオンのように、ちょうど $1 \mu_B$ の磁気能率を持っている。実線の外側では、1重項状態が安定に存在する。漸近線 v_1 と v_2 の存在は次のようにして理解される（尚、今の場合 $v_c = 1$ ）。ポテンシャルが弱い時は、束縛状態ができたと言っても、その波動函数は大きく広がっている。従って電子の波動函数の振幅は不純物原子の近くでも小さく、電子間には殆ど相互作用が働かない。ポテンシャルが深い時には、束縛状態の波動函数は不純物原子のまわりによく局在している。従ってドナー対が極性状態にあると2電子間には非常に強い相互作用が働く。そこで電子はむしろ互いに避け合って、その結果ドナー対は無極性状態に落ち着く。この時には、ドナー対は水素様分子を形成するというよりもむしろ、常磁性不純物原子対を形成していると言った方がよい。図は、このような不純物スピン間に働く交換相互作用が、常に反強磁性的であることを示している。こうして我々は、次のようなドナー対の描像に到達した。すなわち、 $v < v_1$ では常に水素様分子、しかし $v_1 < v < v_2$ では、電子間相互作用がある程度以上大きくなると、水素分子イオンになり得る。最後に $v_1 < v$ ではむしろ不純物スピン対とみなされ、スピン対の間に働く相互作用は反強磁性的である。