

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

激しい熱攪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 $A(t) = e^{iHt/\hbar} A e^{-iHt/\hbar}$, $A = A(0)$ に対する森公式は次の通り。

$$\frac{d}{dt}A(t) = \frac{i}{\hbar} [H, A(t)]_- \equiv iLA(t) = - \int_0^t \varphi_A(t-s) A(s) ds + f_A(t). \quad (1)$$

但し、今は内積にカノニカル相関 $(B(t), C) \equiv \beta^{-1} \int_0^\beta \langle B(t-i\hbar\lambda)C \rangle d\lambda - \langle B(t) \rangle \langle C^\dagger \rangle$ をとる。系に内在した揺らぎ $f_A(t) \equiv e^{(1-P) iLt} f_A$, $f_A = \dot{A} \equiv iLA$ 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 $\varphi_A(t) = (f_A(t), f_A^\dagger)(A, A^\dagger)^{-1} = (2\pi i)^{-1} \oint dz e^{zt} \bar{\varphi}_A(z)$ については森による連分数解 [2] が知られていた。

$$\bar{\varphi}_A(z) = \frac{\Delta_1}{z + \frac{\Delta_2}{z + \frac{\Delta_3}{z + \dots}}} \quad (2)$$

$\langle f_A(t) \rangle = 0$ 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。

$$\Xi_A(z) = \frac{1}{z + \bar{\varphi}_A(z)}. \quad (3)$$

$\Delta_n \equiv (f_n, f_n^\dagger)(f_{n-1}, f_{n-1}^\dagger)^{-1}$ は、隣接三項間漸化式 $f_{n+1} = iL f_n + \Delta_n f_{n-1}$, $f_0 = A$, $\Delta_0 = 0$ [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 $\langle A(t), A^\dagger \rangle$ は $T = \infty$ において自己相関関数 $\langle A(t) A^\dagger \rangle = \text{Tr}\{1 A(t) A^\dagger\} / \text{Tr}\{1\}$ に収束する。 $S=1/2$ 交替鎖上の格子点 j にあるスピンペアの z 成分、 $A = S_{j,1}^z + S_{j,2}^z$ 、の緩和関数 $\Xi_A(t) = (2/\pi) \int_0^\infty d\omega \cos \omega t \text{Re } \Xi_A(-i\omega^+)$ 、 $\omega^+ \equiv \lim_{\epsilon \rightarrow 0^+} (\omega + i\epsilon)$ を計算する。ハミルトニアンを

$$H = J_{AF} \sum_i \mathbf{S}_{i,1} \cdot \mathbf{S}_{i,2} - \alpha \sum_i \mathbf{S}_{i-1,2} \cdot \mathbf{S}_{i,1} \quad (4)$$

と書く。添字 1,2 は格子点にある左右のスピンを表わし、 J_{AF} がそのスピンペアの反強磁性的交換積分である。今後、 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。

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

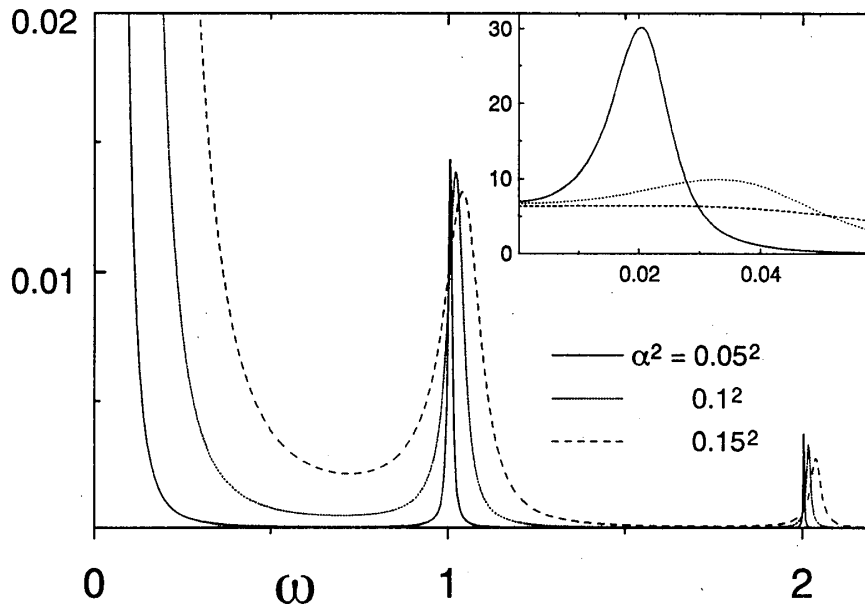
(A) $\alpha^2 \ll 1$ の時、

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

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

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

を得る。ここで、 $f(z, \alpha) \propto \alpha^2$ 、 $z^4 + 5z^2 + 4 = (z - 2i)(z - i)(z + i)(z + 2i)$ に注意しよう。 $\Delta_{n \geq 8} = \Delta_7$ 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 $(1/\pi) \text{Re } \Xi_A(-i\omega^+)$

$\text{Re } \Xi_A(-i\omega^+)$ 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 $\text{Re } \Xi_A(-i\omega^+) = \pi \delta(\omega)$ 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。 $T \sum_q \text{Im } \chi(q, \omega)/\omega = \text{Re } \Xi_A(-i\omega^+)$ 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 $(\text{CH}_3)_2\text{CHNH}_3\text{CuBr}_3$ [18] である。

(B) $\alpha^2 \gg 1$ の時には、

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

となり、 $\text{Re } \Xi_A(-i\omega^+)$ 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。 $|\alpha| \rightarrow \infty$ において、 $\text{Re } \Xi_A(-i\omega^+) = (\pi/4)(\delta(\omega \pm |\alpha|) + 2\delta(\omega))$ 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、 $A = S_{j,1}^z + S_{j,2}^z$ 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. Bliersch, 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).