

イジング的異方性をもつ一次元XY型 反強磁性体の熱力学的性質

Thermodynamic Properties of a Linear Antiferromagnetic XY Chain with an Ising Anisotropy

田 中 稔 次 朗

Toshijiro TANAKA

Thermodynamic properties of a linear antiferromagnetic XY chain with an Ising anisotropy are investigated by using the Feynman inequality method. The specific heat and susceptibility of this system are calculated for several values of J^z .

§ 1 はじめに

最近 Cs_2CoCl_4 などの一次元XY型磁性体における比熱¹⁾や帯磁率^{2,3)}が測定され、それらの磁気的性質が実験的にも次第に明らかになってきた。これまでの一次元磁性体の研究は、ハイゼンベルグモデル、イジングモデルやXYモデルについて主として理論的な側面からなされ、いくつかの場合については厳密解が得られるなど大きな成果を上げている。特にスピン $\frac{1}{2}$ の一次元系は解析的に取り扱うことができ、しかも量子効果が顕著に現われる体系として非常に興味をもたれた。スピン $\frac{1}{2}$ の一次元ハイゼンベルグモデルの熱力学的性質はBulaevskii⁴⁾やFalk⁵⁾によって変分法で、また桂達⁶⁾によって摂動展開の方法で研究された。これらの理論では $S=\frac{1}{2}$ のスピン演算子がフェルミ演算子で表わされ⁷⁾、二体のフェルミオン相互作用を含むハミルトニアンに変換されている。そしてこのハミルトニアンに場の量子論を適用して近似的な自由エネルギーを求め、励起子のエネルギースペクトルや比熱および帯磁率などを計算した。

一次元XYモデルにおける熱力学量についてはLieb⁸⁾や桂⁹⁾によってフェルミ演算子の方法⁷⁾で厳密に計算された。このXYモデルにイジング的な項が少しでも含まれると、先に述べたように4次のフェルミ演算子が現われて正確に解くことはできない。この交換相互作用が異方的なハイゼンベルグハミルトニアンは、スピン $\frac{1}{2}$ の有限個のスピン環について最初にBonnerとFisher¹⁰⁾によって数値的に厳密に解かれ、さらにスピンの大きさが $\frac{1}{2}$ 以上の場合については彼らと同様な方法でBlöte¹¹⁾によって詳しく調べられた。

この論文の目的は、イジング的異方性 J^z をもつ一次元XY型反強磁性体の熱力学量を高橋¹²⁾によって提案されたファイマン不等式の方法を用いて計算し、この量に対する異方性の効果を考

察することである。この定式化はまず系のハミルトニアンをフェルミ演算子で表わし、XYモデルを非摂動ハミルトニアンとして選び、変分法によって近似的な自由エネルギーを得る。そして励起エネルギースペクトルや磁気比熱および帯磁率の異方性 J^z 依存性を調べる。

§2ではファイマン不等式を用いて自由エネルギーの表式を導出する。§3では比熱と帯磁率の数値計算の結果を示し、最後の節では議論を行う。

§2 自由エネルギー

イジング異方性をもつスピン $\frac{1}{2}$ の一次元XY型反強磁性体のハミルトニアンは次のように表わされる。

$$\mathcal{H} = 2J^+ \sum_{j=1}^N [S_j^x S_{j+1}^x + S_j^y S_{j+1}^y] + 2J^z \sum_{j=1}^N S_j^z S_{j+1}^z - g\mu H \sum_{j=1}^N S_j^z \quad (1)$$

ただし J^+ と J^z はそれぞれ横方向と縦方向の交換積分 ($J^+ > J^z \geq 0$)， N はスピンの総数で簡単のため偶数とする。 S_j^x ， S_j^y ， S_j^z は j 番目の格子点におけるスピン演算子のそれぞれ x ， y ， z 成分である。また外部磁場 H は z 方向に加えられているものとし， g は g -因子， μ はボーア磁子である。なお(1)の第1項はXYモデルのハミルトニアンで，第2項はイジング型異方性エネルギー，最後の項はゼーマンエネルギーである。

まずスピン演算子を次のように定義されるフェルミ演算子 a_j および a_j^* で表わす⁷⁾。

$$\begin{aligned} S_j^+ &= (1 - 2n_1)(1 - 2n_2) \cdots (1 - 2n_{j-1}) a_j^* \\ S_j^- &= (1 - 2n_1)(1 - 2n_2) \cdots (1 - 2n_{j-1}) a_j \\ S_j^z &= S_j^+ S_j^- - \frac{1}{2} = n_j - \frac{1}{2} \end{aligned} \quad (2)$$

ただし，

$$n_j = a_j^* a_j \quad (3)$$

a_j ， a_j^* は次の反交換関係を満足する。

$$\begin{aligned} [a_j, a_{j'}^*]_+ &= \delta_{jj'} \\ [a_j, a_{j'}]_+ &= [a_j^*, a_{j'}^*]_+ = 0 \end{aligned} \quad (4)$$

(2)を(1)に代入すると，ハミルトニアンは

$$\begin{aligned}\mathcal{H} = & J^\perp \sum_{j=1}^N [a_j^* a_j + a_j^* a_j] - g\mu H \sum_{j=1}^N (a_j^* a_j - \frac{1}{2}) \\ & + 2 J^z \sum_{j=1}^N [a_j^* a_j a_{j+1}^* a_{j+1} - \frac{1}{2} (a_j^* a_j + a_{j+1}^* a_{j+1}) + \frac{1}{4}]\end{aligned}\quad (5)$$

となる。ここで a_j, a_j^* をフーリエ変換する。

$$a_j = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_k e^{ikj} a_k, \quad a_j^* = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_k e^{-ikj} a_k^* \quad (6)$$

ただし、波数 k は励起子の総数 $n = \sum_{j=1}^N n_j$ が偶数であるか、奇数であるかに応じて境界条件が異なるので次の値をとる。

$$\begin{aligned}k = & \pm \frac{\pi}{N}, \pm \frac{3\pi}{N}, \dots \dots \dots \pm \frac{(N-1)\pi}{N} \quad (N = \text{偶数}) \\ k = & 0, \pm \frac{2\pi}{N}, \dots \dots \dots \pm \frac{(N-2)\pi}{N} \quad (N = \text{奇数})\end{aligned}\quad (7)$$

(6)を(5)に代入すると、次のハミルトニアンが得られる。

$$\begin{aligned}\mathcal{H} = & 2 J^\perp \sum_k [\cos k - g\mu H / 2 J^\perp] a_k^* a_k + \frac{N}{2} g\mu H - \frac{NJ^z}{2} \\ & - 2 J^z \sum_k a_k^* a_k + \frac{2 J^z}{N} \sum_{k_1} \sum_{k_2} \sum_{k_3} \sum_{k_4} \delta(k_1 - k_2 + k_3 - k_4) e^{-i(k_3 - k_4)} a_{k_1}^* a_{k_2} a_{k_3}^* a_{k_4}\end{aligned}\quad (8)$$

ただし $\delta(k_1 - k_2 + k_3 - k_4)$ はクロネッカーのデルタを意味する。(8)は演算子について4次の項を含むので厳密に解くことはできない。これまでいろいろな方法が試みられているが、われわれは高橋¹²⁾によって提案されたファイマン不等式の方法を用いて、この系の自由エネルギーを近似的に計算する。

ファイマン不等式は次のように表わされる。

$$-\beta^{-1} \ln(\text{Tr } e^{-\beta \mathcal{H}}) \leq -\beta^{-1} \ln(\text{Tr } e^{-\beta \mathcal{H}_0}) + \frac{\text{Tr } e^{-\beta \mathcal{H}_0} (\mathcal{H} - \mathcal{H}_0)}{\text{Tr } e^{-\beta \mathcal{H}_0}} \quad (9)$$

ただし、 \mathcal{H} は系のハミルトニアン、 \mathcal{H}_0 は非摂動ハミルトニアンで $\beta = 1/k_B T$ である。上式の左辺は考察している系の自由エネルギーで、実際に計算することの大変難しい量である。一方右辺の方は \mathcal{H}_0 を適当に選ぶことによって容易に計算することができる。そこで(9)の右辺を計算し、その最小値をもって系の自由エネルギーとみなす。問題は非摂動ハミルトニアン \mathcal{H}_0 をどう選ぶかということであるが、その選び方によってこの近似は平均場の近似よりもよい結果を与え

というのが高橋の主張である。われわれは \mathcal{H}_0 として次の一次元反強磁性 XY モデルのハミルトニアンを採用する。

$$\mathcal{H}_0 = \frac{N}{2} g \mu H + \sum_{\mathbf{k}} \varepsilon_{\mathbf{k}} a_{\mathbf{k}}^* a_{\mathbf{k}} \quad (10)$$

ただし $\varepsilon_{\mathbf{k}}$ は励起子のエネルギーである。このハミルトニアンは厳密に解かれているので、よい近似で自由エネルギーが求まるかもしれない。(10)を用いて(9)の右辺を計算し、それを A とおくと、

$$\begin{aligned} A = & \frac{NJ^z}{2} + \frac{N}{2} g \mu H - \beta^{-1} \sum_{\mathbf{k}} \ln(1 + e^{-\beta \varepsilon_{\mathbf{k}}}) + \sum_{\mathbf{k}} (\varepsilon_{\mathbf{k}}^0 - \varepsilon_{\mathbf{k}}) f(\varepsilon_{\mathbf{k}}) \\ & + \frac{2J^z}{N} \sum_{\mathbf{k}} \sum_{\mathbf{q}} [1 - e^{i(\mathbf{k}-\mathbf{q})}] f(\varepsilon_{\mathbf{k}}) f(\varepsilon_{\mathbf{q}}) \end{aligned} \quad (11)$$

ただし、

$$\varepsilon_{\mathbf{k}}^0 = 2J^z \cos \mathbf{k} - g \mu H \quad (12)$$

$$f(\varepsilon_{\mathbf{k}}) = \frac{1}{e^{\beta \varepsilon_{\mathbf{k}}} + 1} \quad (13)$$

である。 A を最小にするためにパラメータ $\varepsilon_{\mathbf{k}}$ で微分する。

$$\begin{aligned} \frac{dA}{d\varepsilon_{\mathbf{k}}} = & -\beta^{-1} \frac{e^{-\beta \varepsilon_{\mathbf{k}}}}{1 + e^{-\beta \varepsilon_{\mathbf{k}}}} - f(\varepsilon_{\mathbf{k}}) + (\varepsilon_{\mathbf{k}}^0 - \varepsilon_{\mathbf{k}}) \frac{df(\varepsilon_{\mathbf{k}})}{d\varepsilon_{\mathbf{k}}} \\ & + \frac{2J^z}{N} \sum_{\mathbf{q}} [2 - e^{i(\mathbf{k}-\mathbf{q})} - e^{-i(\mathbf{k}-\mathbf{q})}] f(\varepsilon_{\mathbf{k}}) f(\varepsilon_{\mathbf{q}}) \end{aligned} \quad (14)$$

$dA/d\varepsilon_{\mathbf{k}} = 0$ が A が最小であるための必要条件になる。このときパラメータ $\varepsilon_{\mathbf{k}}$ は、

$$\varepsilon_{\mathbf{k}} = \varepsilon_{\mathbf{k}}^0 + \frac{4J^z}{N} \sum_{\mathbf{q}} [1 - \cos(\mathbf{k}-\mathbf{q})] f(\varepsilon_{\mathbf{q}}) \quad (15)$$

を満たさなければならない。これはハートリ・フォック近似で得られた励起子のスペクトルに一致している。(15)と(11)から、十分大きな N に対してイジング異方性をもった一次元 XY 型反強磁性体の近似的な自由エネルギーは次のように求まる。

$$\begin{aligned} F = & \frac{NJ^z}{2} + \frac{N}{2} g \mu H - \beta^{-1} \frac{N}{2\pi} \int_{-\pi}^{\pi} dk \ln(1 + e^{-\beta \varepsilon_{\mathbf{k}}}) \\ & - 2J^z \frac{N}{(2\pi)^2} \int_{-\pi}^{\pi} dk \int_{-\pi}^{\pi} dq [1 - \cos(\mathbf{k}-\mathbf{q})] f(\varepsilon_{\mathbf{k}}) f(\varepsilon_{\mathbf{q}}) \end{aligned} \quad (16)$$

ただし,

$$\varepsilon_k = 2J^\perp \cos k - g\mu H - 2J^z + \frac{4J^z}{2\pi} \int_{-\pi}^{\pi} dq [1 - \cos(k-q)f(\varepsilon_q)] \quad (17)$$

エネルギースペクトル ε_k は, (17) から自己無撞着 (self-consistent) の方法でもって計算できる. 絶対零度および有限温度におけるエネルギースペクトルを J^z/J^\perp のいくつかの値について図 1 および図 2 に示す.

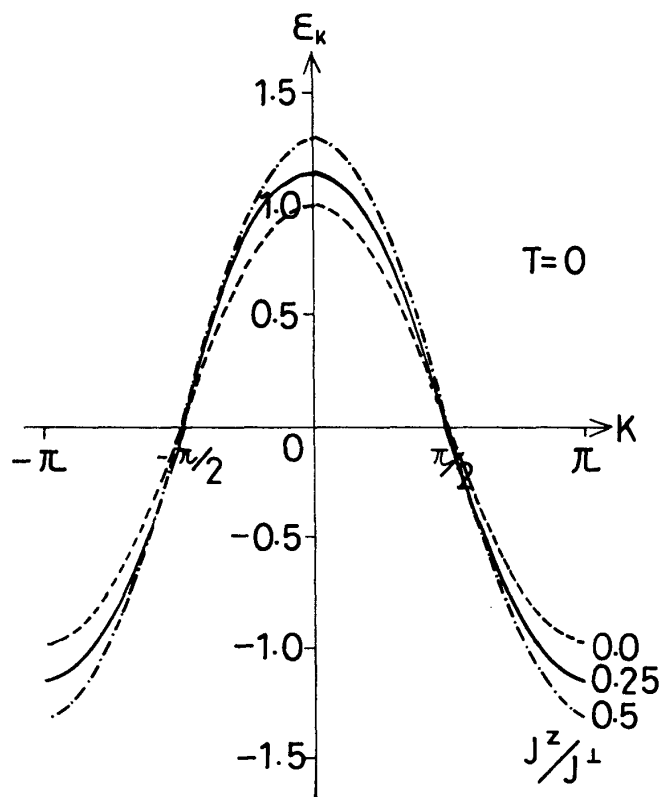


図 1 $T=0K$ における励起子のエネルギースペクトル
XYモデルにイジング異方性 J^z が加わった場合のスペクトルの変化

§ 3 磁気比熱と帯磁率

この節では先に得られた自由エネルギー(16)から, 一次元XY型反強磁性体の熱力学的量, 特に磁気比熱と帯磁率を計算する. XYモデルにイジング異方性が含まれる場合, この異方性が熱力学的量にどのように影響を及ぼすかを調べる. 系の内部エネルギー E は

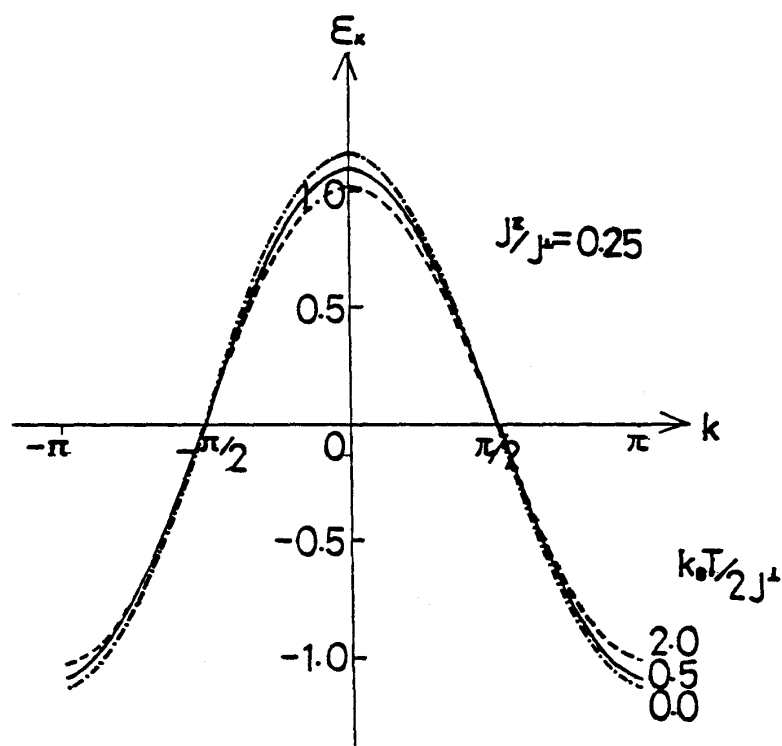


図2 イジング異方性 ($J^z/J^+=0.25$) をもつXYモデルにおけるエネルギースペクトルの温度変化

$$E = \frac{\partial(\beta F)}{\partial \beta} = \frac{NJ^z}{2} + \frac{N}{2}g\mu H + \frac{N}{2\pi} \int_{-\pi}^{\pi} dk \epsilon_k f(\epsilon_k) - 2J^z \frac{N}{(2\pi)^2} \int_{-\pi}^{\pi} dk \int_{-\pi}^{\pi} dq [1 - \cos(k-q)] f(\epsilon_k) f(\epsilon_q) \quad (18)$$

したがって、比熱 C は近似的に、

$$C/Nk_B \simeq \frac{1}{2\pi} \int_{-\pi}^{\pi} dk \left(\frac{\beta \epsilon_k}{2} \right)^2 \text{sech}^2 \left(\frac{\beta \epsilon_k}{2} \right) \quad (19)$$

で表わされる。また磁化 M^z は、

$$M^z = -\frac{\partial F}{\partial H} \simeq -\frac{N}{2}g\mu + g\mu \frac{N}{2\pi} \int_{-\pi}^{\pi} dk f(\epsilon_k) \quad (20)$$

そして帯磁率 χ^{zz} は、

$$\chi^{zz} = \left(\frac{\partial M^z}{\partial H} \right)_{H=0} \quad (21)$$

与えられ、次のように求まる。

$$\begin{aligned}
 \frac{\chi^z 2 J^\perp}{N(\frac{1}{2} g \mu)^2} &\simeq \beta 2 J^\perp \left[\frac{1}{2 \pi} \int_{-\pi}^{\pi} dk \operatorname{sech}^2 \left(\frac{\beta \epsilon_k}{2} \right) \right. \\
 &\quad \left. - \frac{\beta J^z}{(2 \pi)^2} \int_{-\pi}^{\pi} dk \int_{-\pi}^{\pi} dq \{1 - \cos(k-q)\} \operatorname{sech}^2 \left(\frac{\beta \epsilon_k^0}{2} \right) \operatorname{sech}^2 \left(\frac{\beta \epsilon_q^0}{2} \right) \right]_{H=0}
 \end{aligned}
 \quad (22)$$

比熱および帯磁率の表式はいずれも近似的なものである．スピン当りの比熱を J^z/J^\perp のいくつかの値について図3に示す． $J^z=0$ ，すなわち完全なXYモデルの場合，比熱は厳密な結界と一致する．イジング異方性 J^z が大きくなるのに対応し，比熱のピークを与える温度が高温側にシフトし，ピークも高くなることがわかる¹³⁾．これは励起スペクトルの J^z 依存性に起因する．また $J^z/J^\perp=0.25$ の系で磁場が存在する場合の比熱を図4に示す．磁場 H が強くなるに従ってそのピークはおさえられなだらかな丘になっているが，これは磁場によって励起スペクトルが形状を保ったままで低エネルギー側にシフトすることによる．これまでのところイジング異方性が存在するXYモデル系での磁場中の比熱の計算はまだなされていない．

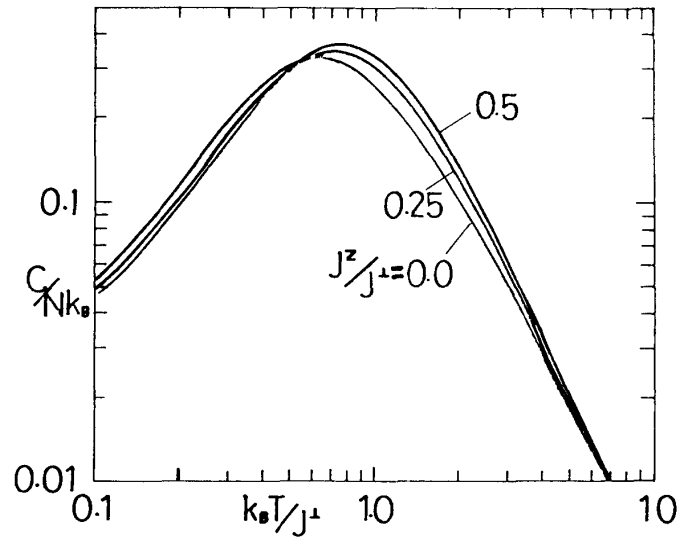


図3 一次元XY型反強磁性体の比熱に対するイジング異方性 J^z の効果

次に帯磁率の計算結果を図5に示す． χ^z はイジング異方性 J^z が大きくなるに従ってピークがおさえられ，高温側では J^z の値に余りよらないことがわかる．

§ 4 結 論

一次元XY型反強磁性体にイジング的な異方性 J^z が存在する場合の磁気比熱および帯磁率をファイマン不等式の方法を用いて計算した．この方法は非摂動ハミルトニアン \mathcal{H}_0 を適当に選ぶことによって，系の自由エネルギーを容易にしかも平均場を越えてよい近似で計算できるというものである．自由エネルギーを導出するとき，ファイマン不等式(9)の右辺を最小にする条

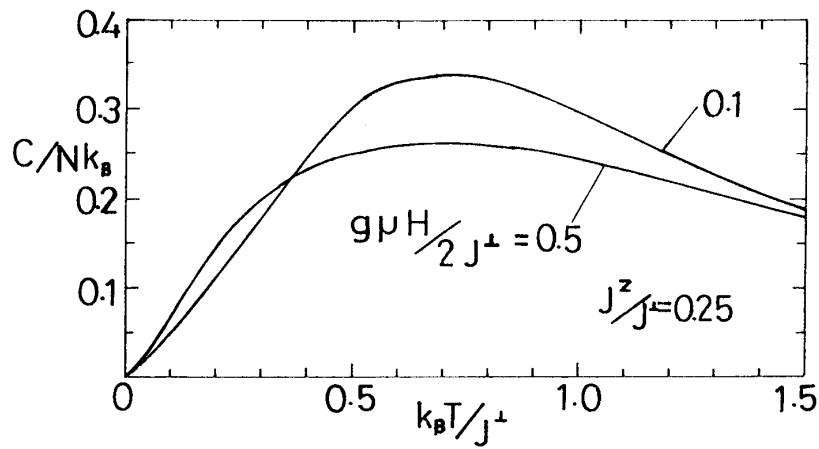


図4 比熱の磁場変化

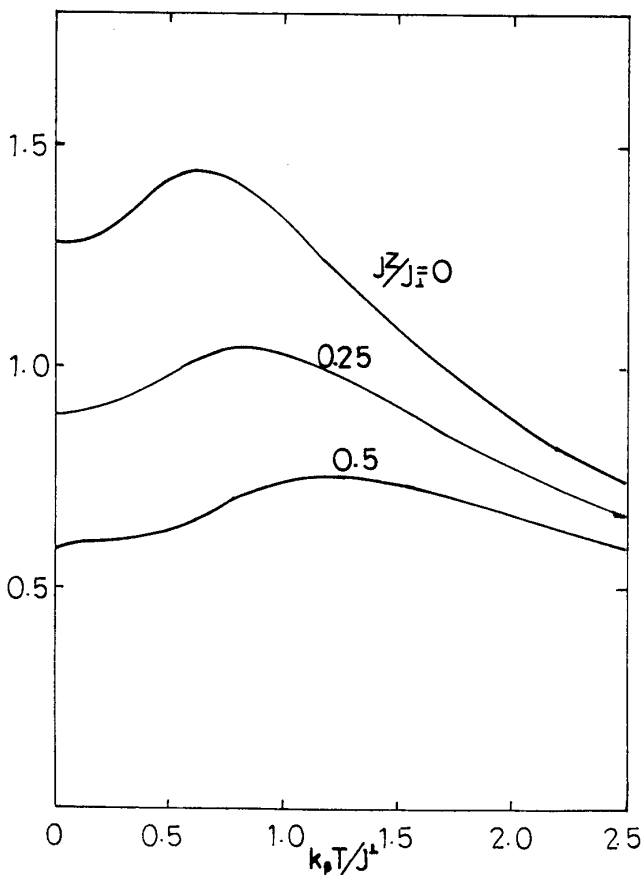


図5 一次元XY型反強磁性体の帯磁率に対するイジング異方性の効果

件から励起子のエネルギースペクトルを自己無撞着に決定する方程式が得られる。これからエネルギースペクトルは J^z に依存し、またそれを通して温度変化することがわかった。

さて比熱についてみると、イジング異方性が大きくなるに従ってピークが高くなり、その位置が高温側にシフトすることがわかった。この結果は、Blöte¹¹⁾ がスピン $\frac{1}{2}$ でイジング異方性を含む11個のスピンから成る XY スピン環を数値的に解いたものと一致する。さらに磁場中の比熱を $J^z / J^+ = 0.25$ の場合について求めたが、そのピークは磁場が強くなるに従っておさえられ、なだらかな丘となつてかなりの温度領域に広がる。したがって測定された比熱に対する磁気的な寄与を調べるには、その磁場変化を見ればよいことがわかる。

帯磁率 χ^{zz} の J^z 依存性および温度変化を調べた。XY系が J^z を含むとスピンはXY面から立ち上がるので、 χ^{zz} の値はXYモデルに比べておさえられ、 J^z が大きくなるに従って帯磁率は小さくなることが示された。

最近弱いイジング異方性 ($J^z / J^+ \approx \frac{1}{4}$) をもつスピン $\frac{1}{2}$ の一次元的なXY型反強磁性体 Cs_2Co

Cl₄の比熱がAlgra達¹⁾によって測定され、その磁性が調べられている。われわれの結果はこれらの実験を解析し、その物理的性質を明らかにする上で有用であると思われる。

最後に、この研究についていろいろと議論して頂いた鹿児島大学工学部の広岡繁先生と数値計算を手伝って頂いた助手の小幡房美氏に深く感謝致します。

参 考 文 献

- 1) H. A. Algra, L. J. de Tongh, H. W. J. Blöte and W. J. Huiskamp, *Physica* **82 B** (1976) 239.
- 2) J. N. McElearney, S. Merchant, G. E. Shankle and R. L. Carlin, *J. Chem. Phys.* **66** (1977) 450.
- 3) P. M. Duxbury, J. Oitmaa, M. N. Barber A. Van der Bilt, K. O. Joung and R. L. Carlin, *Phys. Rev.* **B 24** (1981) 5149.
- 4) L. N. Bulaevskii, *Soviet Phys. -JETP* **16** (1963) 685.
- 5) H. Falk and T. W. Ruijgrok, *Phys. Rev.* **139** (1965) A1203.
- 6) S. Katsura and S. Inawashiro, *J. Math. Phys.* **5** (1964) 1091.
- 7) S. Rodriguez, *Phys. Rev.* **116** (1959) 1474.
- 8) E. Lieb, T. Schultz and D. Mattis, *Ann. Phys.* **16** (1961) 407.
- 9) S. Katsura, *Phys. Rev.* **127** (1962) 1508.
- 10) J. C. Bonner and M. E. Fisher, *Phys. Rev.* **135** (1964) A640.
- 11) H. W. J. Blöte, *Physica* **79 B** (1975) 427.
- 12) M. Takahashi, *J. Phys. Soc. Jpn.* **50** (1981) 1854.
- 13) T. Tanaka, *Inter. Conf. Thermo. and Statis. Mech.* (University of Edinburgh, 1983).