

磁性相におけるスピン感受率

物質・材料研究機構 山瀬博之
神戸大学 久保木一浩

1 はじめに

スピン感受率は物質の磁氣的性質を理解する上で基本的な量ですが、このことは磁性体だけに限る訳ではありません。銅酸化物超伝導体、鉄系超伝導体、重い電子系などでは超伝導相が磁性相近傍に実現することから、超伝導機構を論じる際にもスピン感受率は重要な役割を果たします。常磁性相、つまりスピン回転対称性がある状態で、スピン感受率を計算する方法は、金属磁性論で既に詳細に論じられています [1]。ところが、磁性相ではスピン回転対称性が破れるために、電子数密度や化学ポテンシャルに磁場の一次に比例する項が加わる可能性があり、この効果を取り込んでスピン感受率を計算する必要があります。しかし、この点は研究者の間では十分に認識されていません。実際、著名な文献中 [2, 3, 4, 5, 6] にも計算上の誤りが見受けられ、それが依然として引き継がれてしまっている現状です。

本記事では、磁性相でのスピン感受率の正しい計算方法を解説します [7]。まず、二次元ハバード模型を用いてランダム位相近似 (RPA) の範囲でスピン感受率を、強磁性状態および反強磁性状態で計算し、正しい感受率の表式を導出します。RPA と言うと難しく聞こえるかも知れませんが、静的な感受率は平均場理論の枠組みで得られるので、平均場近似と言っても構いません。ただし、量子多体論でファインマンダイアグラムを用いて、より一般的にスピン感受率のエネルギー依存性や波数依存性を議論し始めると、RPA という言葉を用いるのが普通です。その意味するところは、位相がランダムに変化するために磁気揺らぎのモード間の結合が無視される近似、ということなので、単純なダイアグラムの組み合わせで計算が行われます (7 節を参照)。しかし、本記事の結論は近似には依りませんので、近似方法は重要ではありません。ポイントは、電子数が一定の場合と化学ポテンシャルが一定の場合とで、磁性相でのスピン感受率が本質的に異なることです。例えば、化学ポテンシャルが一定の条件で得られた感受率を用いて、対応する系の電子数を再現するように化学ポテンシャルを調整したとしても、その結果は、電子数一定の条件で得られた感受率とは異なります。この結論は、模型や近似、次元、結晶構造に依存しない一般的なものであることを熱力学的に証明することが出来て、その熱力学的関係式を導出します。以上の結果は金属磁性体に当てはまるもので、電荷励起にギャップがあるスピン系、つまり絶縁体に対しては、たとえスピン回転対称性が破れたとしても、スピン感受率の表式は、電子数が一定の場合と化学ポテンシャルが一定の場合とで一致します。このことも導出する熱力学的関係式から明らかであることを示します。ここで得られた結果は、スピン感受率の非常に基本的な性質であり理論的な観点からの帰結です。本理論結果を数値的シミュレーションや実験的観点からも追認してみると、より包括的な研究になることが期待され、今後の進展が期待されます。

2 スピン感受率の計算の背景

スピン感受率は、しばしばRPAで計算されます。この近似は、3次元系に対しては通常、良い近似になっています。低次元系では残念ながら正確な近似とは言い難いですが、系の定性的な性質を理解するには十分に耐えうる近似であると考えられています。実際、低次元系では、準粒子が定義できないような非フェルミ液体など、いわゆる一体近似の範囲では理解出来ない現象が実験的に多数観測され、理論的理解はけっして容易ではありません。そのような時、RPAによるスピン感受率の研究は、磁氣的性質を定性的に理解する上で極めて重要な役割を果たします。

RPAによるスピン感受率は多くの場合、磁気秩序のない常磁性相で計算されています。しかし、磁気秩序相でも計算することは可能で、例えば文献[8, 9]にその結果が示されており、また文献[10]は教科書として広く知られています。さらに、高温超伝導体[11]や鉄系プニクタイトやカルコゲナイド[12]、重い電子系[13]で実際に観測されているように、磁気秩序と超伝導が共存するような相が実現することもあります。このような複雑な状況であっても、RPAという近似の範囲でスピン感受率の計算が可能になります。

通常、RPAの感受率 χ は、電子正孔励起が電子間相互作用を介して無限個生じる効果に対応します。式で書くと幾何級数で与えられ、シンボリックには

$$\chi \propto \chi_0 + \chi_0 g \chi_0 + \chi_0 g \chi_0 g \chi_0 + \dots, \quad (1)$$

$$= (1 - \chi_0 g)^{-1} \chi_0 \quad (2)$$

という形になります。ここで χ_0 が電子正孔励起を表し、 g が電子間相互作用に対応しています。 χ_0 や g は、場合によっては行列で与えられることもありますが、その場合であってもRPAの感受率は式(2)の形で与えられます。電子が磁気秩序相において準粒子として振る舞う場合、 χ_0 をその準粒子表示で計算すれば、常磁性相の時の計算と形式的に同じになります。ただし、秩序相では並進対称性が破れることがありますので、それに伴ってウムクラップ過程を考慮することが一般的に必要になります。このようなことは、無論、研究者の間で広く認識されており、横スピン感受率の計算に対しては正しい結果が得られます[8, 9, 3, 16, 4, 5, 18, 6]。しかし、縦スピン感受率の計算においては誤った結果を与える可能性があります。この点は研究者の間では認識されておらず[2, 3, 4, 5, 6]、そこを明確にするのが本解説の趣旨になります。

磁気秩序相においてスピン回転対称性が破れ、その結果スピンはある方向を向きます。スピン感受率は外部磁場に対する線形応答係数なので、この状態に外から無限小の磁場を印加することを考えます。外場が入れば、化学ポテンシャル(または電子数密度)も少し変化することが期待されます。通常、化学ポテンシャル(または電子数密度)は、この外場の二次に比例する項を持ちますので、線形応答理論の範囲ではその効果は重要ではありません。しかし、縦スピン感受率は外場をスピンの方向に平行に印加した場合の応答係数になり、化学ポテンシャル(または電子数密度)に外場の一次に比例する項が生じる場合があります。この効果が磁気秩序相で縦スピン感受率を計算する際に極めて重要になります。ここでは正方格子上的ハバード模型を例にとりて説明していきます。具体的な解析式を得るためにRPAの範囲で考察を行いますが、本解説の結論は一般的で近似には依存しないものです。想定する磁気秩序相も一般的には任意ですが、ハバード模型の平均場解として知られている強磁性

秩序と反強磁性秩序を例にとります。そこで、次の第3節でハバード模型を紹介し、強磁性および反強磁性不安定性がある場合の平均場理論を示します。対応する縦スピン感受率の結果を第4、5節で各々示します。第6節では、化学ポテンシャルが固定された系に対する結果をまとめます。同じRPAの範囲ですが、ファインマンダイアグラムの観点からの考察も第7節で行います。第8節では得られた結果の一般性を熱力学の観点から示し、第9節では本結果に対する幾つかのコメントや直感的理解を示します。最後の第10節で本解説のまとめをします。

3 二次元ハバード模型でのスピン感受率

正方格子上に定義された二次元ハバード模型を例にとって、磁性相でのスピン感受率の計算方法を具体的に記し、問題点を浮き上がらせます。ハバード模型は、以下のハミルトニアンで与えられます。

$$\mathcal{H} = - \sum_{i,j,\sigma} t_{ij} c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + U \sum_j n_{j\uparrow} n_{j\downarrow} + \mathcal{H}_z \quad (3)$$

ここで、 t_{ij} は格子点 i と j の間の電子の遷移積分で、最近接間および次近接間までを考えて、各々を t および t' で表します。 $c_{i\sigma}^\dagger$ と $c_{i\sigma}$ は、サイト i におけるスピン σ の電子の生成および消滅演算子で、フェルミオンの交換関係に従います。 U は、同一サイトでのクーロン斥力で電子間の相互作用を表し、この項によって強磁性や反強磁性不安定性が生じます。 \mathcal{H}_z は、外から印加する磁場と電子スピンの相互作用でいわゆるゼーマン項と言われるものです。外場を考える必要があるのは、スピン感受率は無限小の外部磁場に対する線形応答係数であるためです。強磁性状態での縦スピン感受率は一樣な外場に対する応答で、一方、反強磁性状態の縦スピン感受率として反強磁性と同じ波数で変調する外場に対する応答を考えます。すなわち、式で書けば、

$$\mathcal{H}_z = -h \sum_j \frac{1}{2} (n_{j\uparrow} - n_{j\downarrow}) e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_j} \quad (4)$$

となり、強磁性状態では $\mathbf{q} = 0$ 、ネール状態では $\mathbf{q} = \mathbf{Q} \equiv (\pi, \pi)$ となります。ここで、 h は有効的な磁場で、 $h = g\mu_B H$ です。 g は g 因子、 μ_B はボーア磁子、 H は外部から印加した磁場になります。スピン感受率の計算では、外部磁場は無限小なので最終的に $h \rightarrow +0$ という極限をとります。

ハバード模型のような単純なものであってもスピン感受率を厳密に計算することは多くの場合出来ません。ここでは、RPA でスピン感受率を計算します。RPA での静的な感受率は、平均場理論を用いて計算することが出来ます。サイト j での磁化 m_j およびサイトあたりの電子数（「電子数密度」[14] と呼ぶ） n_j は、

$$m_j = \frac{1}{2} (n_{j\uparrow} - n_{j\downarrow}), \quad (5)$$

$$n_j = n_{j\uparrow} + n_{j\downarrow} \quad (6)$$

で与えられます。これらを用いてハバード相互作用を書き直すと

$$n_{j\uparrow} n_{j\downarrow} = \frac{1}{4} n_j n_j - m_j m_j \quad (7)$$

となります。系の電子数密度が空間的に一様であると仮定すれば、 n_j の期待値である $\langle n_j \rangle$ は、 $\langle n_j \rangle = n$ となります。磁化は強磁性状態では一様であり、一方、ネール状態では磁化は波数 Q で変調します。平均場理論では、電子数密度や磁化の揺らぎの二次の項を無視します。その結果、相互作用 (7) は一体の形式に近似されます。

$$n_{j\uparrow}n_{j\downarrow} \rightarrow \frac{n}{2}n_j - 2\langle m_j \rangle m_j - \frac{1}{4}n^2 + \langle m_j \rangle^2 \quad (8)$$

導入した2つの平均場 n と $\langle m_j \rangle$ は、自由エネルギーを最小化するようにセルフコンシステントに決定します。

強磁性状態では、磁化の期待値 $\langle m_j \rangle$ は、サイト j には依存せず一様ですから、 $\langle m_j \rangle = m$ と置くことができます。格子点の総数を N 、化学ポテンシャルを μ とすれば、平均場ハミルトニアンは、

$$\mathcal{H}_{\text{MF}} = \sum_{\mathbf{k}, \sigma} \left[\xi_{\mathbf{k}} - \sigma \left(Um + \frac{\hbar}{2} \right) \right] c_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger c_{\mathbf{k}\sigma} - N \frac{U}{4} n^2 + NUm^2 \quad (9)$$

となり、バンド分散は

$$\xi_{\mathbf{k}} = -2t(\cos k_x + \cos k_y) - 4t' \cos k_x \cos k_y + \frac{Un}{2} - \mu \quad (10)$$

で与えられます。したがって、サイトあたりの自由エネルギー ω は、

$$\omega = -\frac{T}{N} \log \text{Tr} e^{-\mathcal{H}_{\text{MF}}/T}, \quad (11)$$

$$\begin{aligned} &= -\frac{T}{N} \sum_{\mathbf{k}} \log(1 + e^{-(\xi_{\mathbf{k}} - Um - \frac{\hbar}{2})/T}) \\ &\quad - \frac{T}{N} \sum_{\mathbf{k}} \log(1 + e^{-(\xi_{\mathbf{k}} + Um + \frac{\hbar}{2})/T}) - \frac{U}{4} n^2 + Um^2 \end{aligned} \quad (12)$$

となります。k に関する和は第一ブリルアンゾーンに関してです。自由エネルギー (12) を n と m に関して最小化、つまり $\frac{\partial \omega}{\partial n} = 0$ 、 $\frac{\partial \omega}{\partial m} = 0$ を解けば、セルフコンシステント方程式

$$n = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \left[f \left(\xi_{\mathbf{k}} - Um - \frac{\hbar}{2} \right) + f \left(\xi_{\mathbf{k}} + Um + \frac{\hbar}{2} \right) \right], \quad (13)$$

$$m = \frac{1}{2N} \sum_{\mathbf{k}} \left[f \left(\xi_{\mathbf{k}} - Um - \frac{\hbar}{2} \right) - f \left(\xi_{\mathbf{k}} + Um + \frac{\hbar}{2} \right) \right] \quad (14)$$

が得られます。ここで、 $f(x) = 1/(e^{x/T} + 1)$ はフェルミ分布関数です。

ネール状態では、磁化の期待値は $\langle m_j \rangle = m_Q e^{iQ \cdot \mathbf{r}_j}$ となり、波数 Q で磁化は変調します。ここで、 m_Q はスタガード磁化と呼ばれ、ネール状態の秩序パラメーターです。この時、平均場ハミルトニアンは、

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_{\text{MF}} &= \sum'_{\mathbf{k}, \sigma} \left(c_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger c_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}\sigma}^\dagger \right) \begin{pmatrix} \xi_{\mathbf{k}} & -\sigma \left(Um_Q + \frac{\hbar}{2} \right) \\ -\sigma \left(Um_Q + \frac{\hbar}{2} \right) & \xi_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} c_{\mathbf{k}\sigma} \\ c_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}\sigma} \end{pmatrix} \\ &\quad - N \frac{U}{4} n^2 + NUm_Q^2 \end{aligned} \quad (15)$$

となります。強磁性の時と違って \mathbf{k} に関する和は、磁気ブリルアンゾーン、 $|k_x| + |k_y| \leq \pi$ に関してで、それを明示するために和の記号の右上にプライムをつけてあります。式 (15) の行列を対角化すれば、ネール状態での準粒子分散 $E_{\mathbf{k}}^{\pm}$ が求まって、それは

$$E_{\mathbf{k}}^{\pm} = \xi_{\mathbf{k}}^{\pm} \pm D_{\mathbf{k}}, \quad (16)$$

$$\xi_{\mathbf{k}}^{\pm} = \frac{1}{2}(\xi_{\mathbf{k}} \pm \xi_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}}), \quad (17)$$

$$D_{\mathbf{k}} = \sqrt{(\xi_{\mathbf{k}}^{-})^2 + \left(Um_{\mathbf{Q}} + \frac{h}{2}\right)^2} \quad (18)$$

となります。したがって、サイトあたりの自由エネルギーは

$$\omega = -\frac{2T}{N} \sum'_{\mathbf{k}} \log \left(1 + e^{-E_{\mathbf{k}}^+ / T}\right) - \frac{2T}{N} \sum'_{\mathbf{k}} \log \left(1 + e^{-E_{\mathbf{k}}^- / T}\right) - \frac{U}{4} n^2 + Um_{\mathbf{Q}}^2 \quad (19)$$

と求まります。 n と $m_{\mathbf{Q}}$ に関して、式 (19) を最小化すれば、

$$n = \frac{2}{N} \sum'_{\mathbf{k}} [f(E_{\mathbf{k}}^+) + f(E_{\mathbf{k}}^-)], \quad (20)$$

$$m_{\mathbf{Q}} = -\frac{1}{N} \sum'_{\mathbf{k}} \frac{Um_{\mathbf{Q}} + \frac{h}{2}}{D_{\mathbf{k}}} [f(E_{\mathbf{k}}^+) - f(E_{\mathbf{k}}^-)] \quad (21)$$

というセルフコンシステント方程式が得られます。

正方格子上的ハバード模型に関する平均場理論は初等的ですから、大昔に全てが完全に分かっているはずと思われるかも知れませんが、包括的な理論研究が行われたのは、実は最近です [15]。平均場理論は、 U が小さい弱結合領域でより良い近似になっていることが期待されるため、本研究では $U = 3t$ を取ります。この U に対して強磁性状態やネール状態がどのようなパラメタ領域で安定化するかが文献 [15] に示されています。それに従って、強磁性状態では $t' = -0.45t$ かつ $n = 0.2$ 、ネール状態では $t' = -0.2t$ かつ $n = 1.1$ というパラメタを取ります。しかしながら本研究で得られる結論は、パラメタ選びには依存しない一般的なものです。以下、エネルギーのユニットを t として、つまり $t = 1$ として計算結果を示します。

4 強磁性状態での一様スピン感受率

縦スピン感受率は、式 (14) を有効磁場 h に関して一階微分をとり、 $h \rightarrow +0$ の極限をとること、つまり $\frac{\partial m}{\partial h} |_{h \rightarrow +0}$ を計算することで得られます。磁場に関する μ や n の一階微分は $h \rightarrow +0$ の極限でゼロになるはずだから、それに関する微分を考える必要はない、という議論を聞くことがあります。それは、磁性相では一般には正しくないのですが、常磁性相では正しい考え方ですので、この考えに従って計算を進めてみます。このようにして計算した縦スピン感受率を $\tilde{\chi}(0)$ とすると、

$$\tilde{\chi}(0) = \frac{1}{4} \frac{\chi_{\uparrow} + \chi_{\downarrow}}{1 - \frac{U}{2}(\chi_{\uparrow} + \chi_{\downarrow})} \quad (22)$$

という結果が得られます。ここで、

$$\chi_{\uparrow(\downarrow)} = -\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} f'(\xi_{\mathbf{k}} \mp Um) \quad (23)$$

で、 f' はエネルギーに関するフェルミ面分布関数の一階微分です。

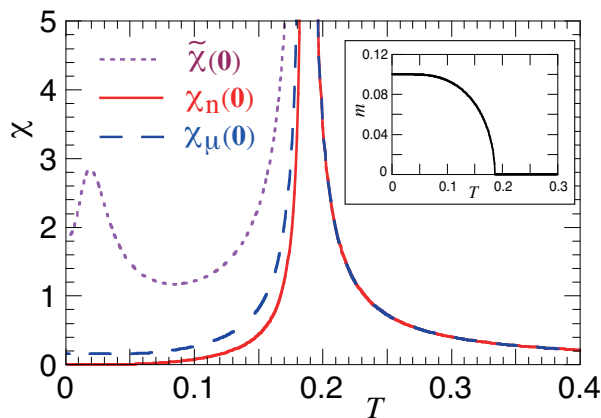


図 1: 電子数密度を固定した時の縦スピン感受率の温度依存性。パラメタは、 $n = 0.2, t' = -0.45, U = 3$ で、キュリー温度は $T_{\text{FM}} = 0.187$ になり基底状態は強磁性になります。 $\tilde{\chi}(0)$ は式 (22) の結果であり、 $T > T_{\text{FM}}$ でのみ正しい結果を与えます。一方、 $\chi_n(0)$ は式 (24) の結果に対応し、すべての温度領域で正しいです。 $\chi_\mu(0)$ は式 (26) に対応し、化学ポテンシャルは与えられた電子数密度 $n = 0.2$ を各温度で再現するように調整しています。しかし、この結果は、 $T > T_{\text{FM}}$ でのみ正しいです。挿入図は式 (14) を解いて得られた磁気モーメントの温度依存性です。

図 1 は、 $\tilde{\chi}(0)$ の温度依存性です。温度 T を下げると、 $\tilde{\chi}(0)$ は大きくなり、キュリー温度 $T_{\text{FM}} (= 0.187)$ で発散します。キュリー温度以下では、強磁性秩序パラメタ m が有限になります。 m の値は、セルフコンシステント方程式 (14) によって決まり、温度を下げるに伴って大きくなります。予想されるように、 T_{FM} 以下の磁性相では $\tilde{\chi}(0)$ は抑制されます。しかし、より低温側で $\tilde{\chi}(0)$ は上昇し始め、ピーク構造が形成されます。このピーク構造は、明らかに非物理的な結果であると思われます。その原因は、化学ポテンシャルが、常磁性の時と同様に強磁性相においても磁場の関数として二次である、という誤った仮定にあります。このことを実際に示すために、化学ポテンシャルの磁場依存性、つまり $\Delta\mu(T, h) \equiv \mu(T, h) - \mu(T, 0)$ という量を図 2 にプロットしました。化学ポテンシャル μ は、常磁性相では確かに $h = 0$ の周りで磁場の二次関数になっています。二次になる理由は、スピンの回転対称性があるためです。 $h = 0$ 周りの曲率は、 T_{FM} に近づくにつれ大きくなり、 T_{FM} 直上では無限大になります。強磁性相に入ると磁場に関する一次の項が生じて、 $h = 0$ では特異性があります。この一次項が生じる理由は、スピンの回転対称性が破れた結果、無限小の磁場を外から印加した際に、その磁場の方向が強磁性の磁化の方向と同じ方向か反対方向かによって系の応答が異なるためです。スピン感受率は、外部磁場の一次に対する応答係数ですから、磁気秩序相で生じる一次項の効果を無視することは出来ません。それを無視して計算した式 (22) は、したがって常磁性相でのみ正しい結果になります。図 1 では $\tilde{\chi}(0)$ は低温でピーク構造をとっていますが、 U を少し大きな値に設定したりすると発散することもあります。この発散は新

たな磁気不安定の存在を示している訳ではなく、磁性相で生じる外場に対する一次項を無視した結果生じた誤った振る舞いです。

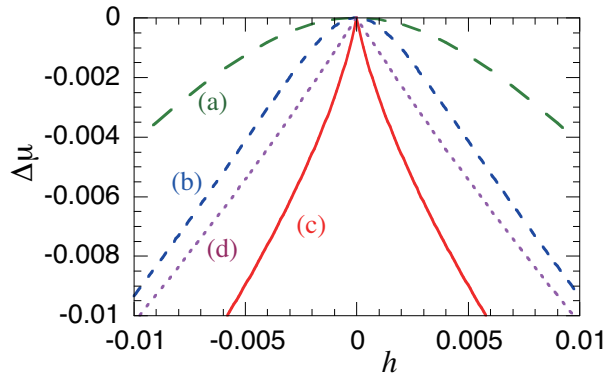


図 2: 化学ポテンシャルの外部磁場 h 依存性を 4 つの温度 T に関してプロット: (a) $T = 1.1T_{\text{FM}}$, (b) $T = 1.04T_{\text{FM}}$, (c) $T = 0.99T_{\text{FM}}$, (d) $T = 0.9T_{\text{FM}}$ 。

4.1 電子数密度が一定の場合

最初に電子数密度を固定した場合を考えます。磁気秩序相でスピン感受率を正しく計算するためには、 μ の外部磁場に関する一階微分を考慮して式 (13) と式 (14) の h 微分を計算する必要があります。その結果、

$$\chi_n(\mathbf{0}) = \left. \frac{\partial m}{\partial h} \right|_{h \rightarrow +0} = \frac{\chi_{\uparrow}\chi_{\downarrow}}{\chi_{\uparrow} + \chi_{\downarrow} - 2U\chi_{\uparrow}\chi_{\downarrow}}, \quad (24)$$

$$\left. \frac{\partial \mu}{\partial h} \right|_{h \rightarrow +0} = -\frac{1}{2} \frac{\chi_{\uparrow} - \chi_{\downarrow}}{\chi_{\uparrow} + \chi_{\downarrow} - 2U\chi_{\uparrow}\chi_{\downarrow}} \quad (25)$$

という式が得られます。常磁性相では、 $\chi_{\uparrow} = \chi_{\downarrow}$ なので、式 (24) は式 (22) を再現し、かつ $\left. \frac{\partial \mu}{\partial h} \right|_{h \rightarrow +0} = 0$ となることが分かります。しかし、強磁性相では、明らかに $\chi_{\uparrow} \neq \chi_{\downarrow}$ ですから、式 (24) は式 (22) とは大きく異なることが容易に分かります。さらに、 $\left. \frac{\partial \mu}{\partial h} \right|_{h \rightarrow +0}$ が有限になり外場に関する一次の項が生じていることが分かります。図 1 に $\chi_n(\mathbf{0})$ の温度依存性を示しました。温度を下げると、 $\chi_n(\mathbf{0})$ は強磁性相で単調に抑制されます。磁気モーメントが温度の低下と共に発達しますから、外部磁場を磁気モーメントの方向に印加した時、系の磁気感受率は低温で抑制されるはずで、図 1 は実際にそうなっていることを示しています。つまり、図 1 において、 $\tilde{\chi}(\mathbf{0})$ (式 (22)) は強磁性相のなかでピーク構造を持つ振る舞いが見られましたが、それは $\left. \frac{\partial \mu}{\partial h} \right|_{h \rightarrow +0}$ の寄与を無視したことにより誤りであることが分かります。図 2 から容易に想像できるように、 $\left. \frac{\partial \mu}{\partial h} \right|_{h \rightarrow +0}$ は、常磁性相ではゼロですが磁気秩序相では決して無視できる量ではありません。図 3 に、 $\left. \frac{\partial \mu}{\partial h} \right|_{h \rightarrow +0}$ の温度依存性をプロットしました。期待されるように、高温部分から温度を下げたとき、 T_{FM} まではゼロですが、 $T = T_{\text{FM}}$ の低温側で発散し、磁性相では有限になります。その大きさは、 $\chi_n(\mathbf{0})$ (図 1) の大きさとほぼ同じくらいであることが分かります。

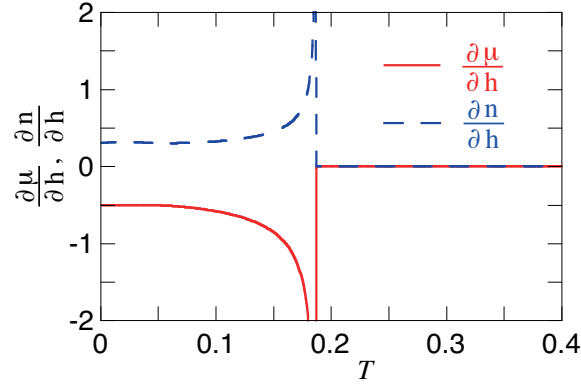


図 3: 外部磁場 h に関する μ と n の一階微分の温度依存性。パラメタは、 $n = 0.2, t' = -0.45, U = 3$ でキュリー温度は $T_{\text{FM}} = 0.187$ 。

4.2 化学ポテンシャルが一定の場合

次に μ を固定した場合を考えます。この時、 μ が固定されていることに注意して式 (13) と式 (14) を h に関して微分します。すると、

$$\chi_{\mu}(0) = \left. \frac{\partial m}{\partial h} \right|_{h \rightarrow +0} = \frac{1}{4} \frac{\chi_{\uparrow} + \chi_{\downarrow} + 2U\chi_{\uparrow}\chi_{\downarrow}}{1 - U^2\chi_{\uparrow}\chi_{\downarrow}}, \quad (26)$$

$$\left. \frac{\partial n}{\partial h} \right|_{h \rightarrow +0} = \frac{1}{2} \frac{\chi_{\uparrow} - \chi_{\downarrow}}{1 - U^2\chi_{\uparrow}\chi_{\downarrow}} \quad (27)$$

という式が得られます。式 (26) は文献 [8, 10] で既に知られています。

常磁性相では、 $\chi_{\uparrow} = \chi_{\downarrow}$ ですから、 $\left. \frac{\partial n}{\partial h} \right|_{h \rightarrow +0} = 0$ となり、かつ $\chi_{\mu} = \chi_n = \tilde{\chi}$ となることが式 (26) と式 (27) から容易に読み取れます。したがって、電子数密度を固定した時のスピン感受率と化学ポテンシャルを固定した時のスピン感受率は同じになります。

しかしながら、強磁性では $\chi_{\uparrow} \neq \chi_{\downarrow}$ ですから、図 3 に示されているように $\left. \frac{\partial n}{\partial h} \right|_{h \rightarrow +0}$ は有限になり、 T_{FM} の低温側で発散します。言うまでもなく、式 (24) と式 (26) の比較は、同じ条件、つまり同じ電子数密度と同じ化学ポテンシャルで行う必要があります。化学ポテンシャル一定の条件で計算した物理量を用いて電子数密度一定の系を記述するためには、通常、系の電子数密度を再現するように化学ポテンシャルを調整します。この通常の方法に従って、各温度で $n = 0.2$ を再現するように化学ポテンシャルを調整して、 χ_{μ} の温度依存性を図 1 に示しました。式 (24) と式 (26) の関数形は異なりますが、両者は秩序相内で物理的には一見、正しい結果を与えます。しかしながら、電子数密度が固定された系では、 χ_n が正しい結果であって、仮に化学ポテンシャルを正しい電子数密度を再現するように調整しても χ_{μ} は χ_n を再現することが出来ません。ただし、化学ポテンシャルが固定された系では、 χ_{μ} (式 (26)) が正しい結果を与え、仮に化学ポテンシャルを再現するように電子数密度を調整しても χ_n は正しい結果を再現することが出来ません。その具体例を 6 節に記しました。縦スピン感受率 χ_{μ} が磁性相において χ_n と同じにならない理由は、 μ と n が式 (13) と式 (14) において対称ではなく、それゆえに μ と n の外部磁場依存性 (図 3 を参照) も互いに異なるためです。

5 ネール状態での交替スピン感受率

今までは強磁性秩序の場合を考えてきましたが、ネール状態の場合であっても感受率の計算には注意が必要になります。ただし、強磁性のような一様スピン感受率の縦成分ではなく、交替スピン感受率の縦成分の計算において注意が必要になります。縦交替スピン感受率は、式 (21) で与えられる m_Q を用いて、 $\left. \frac{\partial m_Q}{\partial h} \right|_{h \rightarrow +0}$ で定義されます。ここで h は式 (4) で導入した交替磁場の大きさで、波数は $q = Q$ です。常磁性相ではスピンの回転対称性がありますから、 μ や n は h が小さい極限で h の二次関数になります。この時、 $\left. \frac{\partial \mu}{\partial h} \right|_{h \rightarrow +0} = 0$ かつ $\left. \frac{\partial n}{\partial h} \right|_{h \rightarrow +0} = 0$ となりますので、式 (21) において h に関する μ と n の一階微分を考える必要はありません。したがって交替スピン感受率は、

$$\tilde{\chi}(Q) = \frac{1}{2} \frac{\chi^{(0)}(Q)}{1 - U\chi^{(0)}(Q)} \quad (28)$$

となり、

$$\chi^{(0)}(Q) = -\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}}' \frac{(\xi_{\mathbf{k}}^-)^2}{D_{\mathbf{k}}^3} (f(E_{\mathbf{k}}^+) - f(E_{\mathbf{k}}^-)) - \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}}' \left(\frac{Um_Q}{D_{\mathbf{k}}} \right)^2 (f'(E_{\mathbf{k}}^+) + f'(E_{\mathbf{k}}^-)) \quad (29)$$

が得られます。常磁性相では、 $E_{\mathbf{k}}^{\pm}$ (式 (16)) に含まれているネール秩序パラメタは $m_Q = 0$ となります。ネール状態では、セルフコンシステント方程式 (20) と (21) を解いて m_Q かつ n (または μ) を決定してやれば、式 (28) を適応できるように思われるかもしれませんが。これは正しくないのですが、そうやって計算した結果を $\tilde{\chi}(Q)$ として、図 4 にその温度依存性をプロットしました。温度を下げると、 $\tilde{\chi}(Q)$ は成長しネール温度 $T_{AF} = 0.380$ で発散します。ここまでは常磁性状態ですから正しい結果です。 T_{AF} 以下では、交替スピン感受率は抑制されるはずで、実際にそうなっていますが、 $T \lesssim 0.2$ で上昇しています。これは明らかに物理的におかしな結果で、このような結果が得られた理由は、常磁性相内の場合と同じように磁性相においても μ と n は無限小の外場 h に関して二次で変化するだろう、という誤った仮定にあります。前節にて強磁性の時に $\tilde{\chi}$ が磁性相において正しくないのと同じ理由です。なお、図 4 では $\tilde{\chi}(Q)$ が低温で少し上昇した程度でしたが、 U を大きくしたりしてパラメタを変化させると $\tilde{\chi}(Q)$ が低温で発散する場合があります。

図 5 はいくつかの温度に対して、外部磁場 h の関数として化学ポテンシャルの変化、つまり $\Delta\mu = \mu(T, h) - \mu(T, 0)$ をプロットしたものです。 $T > T_{AF}$ である限り、 $\left. \frac{\partial \mu}{\partial h} \right|_{h \rightarrow +0} = 0$ であることが容易に分かります。しかし、 T_{AF} では、 $\Delta\mu$ は $h = 0$ で特異性を持ち、 $h = 0$ 周りで線形に変化するようになります。この一次項の存在が、磁性相において正しく感受率を計算する際に重要になります。正しい式は、電子数密度が固定されているか、または化学ポテンシャルが固定されているかによって異なりますので、各々の場合に分けて説明をしていきます。

5.1 電子数密度が一定の場合

電子数密度 n が一定という条件の下、式 (20) と式 (21) を h に関して微分して、 $h \rightarrow +0$ の極限を取ります。 $\frac{\partial m}{\partial h}$ と $\frac{\partial \mu}{\partial h}$ に関する連立方程式が得られますが、それは容易に解くことが出

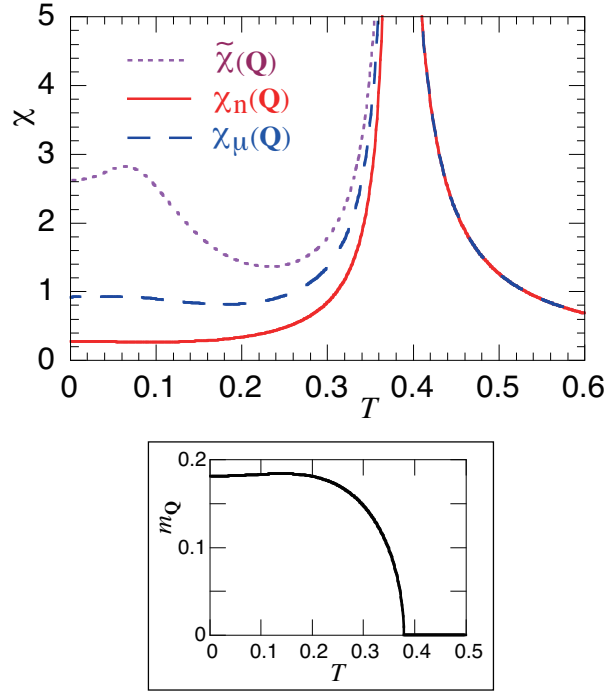


図 4: 電子数密度を固定した時の縦スピン感受率の温度依存性で $n = 1.1$ 、 $t' = -0.2$ 、 $U = 3$ というパラメタをとっています。ネール温度は $T_{AF} = 0.380$ で、この温度以下で反強磁性モーメントが発達します。 $\tilde{\chi}(\mathbf{Q})$ の結果は式 (28) に対応し、 $T > T_{AF}$ でのみ正しいです。 $\chi_n(\mathbf{Q})$ は式 (30) の結果で全温度領域で正しい結果を与えます。 $\chi_\mu(\mathbf{Q})$ は、化学ポテンシャルが一定の条件下で計算した感受率で (式 (37) に対応) 各温度にて $n = 1.1$ という電子数密度を再現するように化学ポテンシャルを調整しています。しかし、こうして得られた $\chi_\mu(\mathbf{Q})$ の結果は、 $T > T_{AF}$ でのみ正しいです。下の挿入図は式 (21) を解いて得られた磁気モーメントの温度依存性です。

来て、

$$\chi_n(\mathbf{Q}) = \left. \frac{\partial m}{\partial h} \right|_{h \rightarrow +0} = \frac{1}{2} \frac{\chi_n^{(0)}(\mathbf{Q})}{1 - U\chi_n^{(0)}(\mathbf{Q})}, \quad (30)$$

$$\left. \frac{\partial \mu}{\partial h} \right|_{h \rightarrow +0} = -\frac{1}{2} \frac{a_{12}/a_{11}}{1 - U\chi_n^{(0)}(\mathbf{Q})} \quad (31)$$

となります。ここで、

$$\chi_n^{(0)}(\mathbf{Q}) = \frac{a_{11}a_{22} - a_{12}a_{21}}{a_{11}} \quad (32)$$

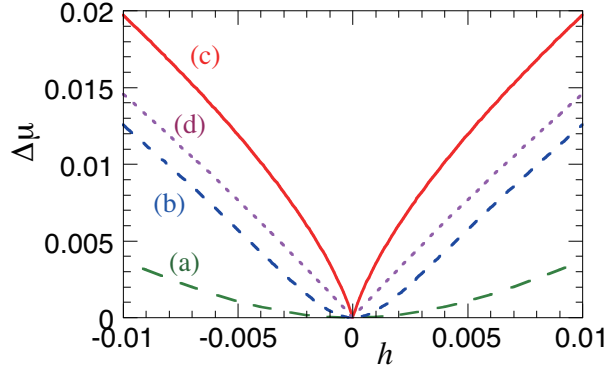


図 5: いくつかの温度に対する化学ポテンシャルの外部磁場 h 依存性: (a) $T = 1.1T_{\text{AF}}$, (b) $T = 1.03T_{\text{AF}}$, (c) $T = 0.99T_{\text{AF}}$, (d) $T = 0.9T_{\text{AF}}$. ここでネール温度は $T_{\text{AF}} = 0.380$ で、パラメタは $n = 1.1$, $t' = -0.2$, $U = 3$ です。

で

$$a_{11} = -\frac{2}{N} \sum_{\mathbf{k}}' \left(f'(E_{\mathbf{k}}^+) + f'(E_{\mathbf{k}}^-) \right), \quad (33)$$

$$a_{12} = \frac{2}{N} \sum_{\mathbf{k}}' \frac{Um_{\mathbf{Q}}}{D_{\mathbf{k}}} \left(f'(E_{\mathbf{k}}^+) - f'(E_{\mathbf{k}}^-) \right), \quad (34)$$

$$a_{21} = \frac{1}{2} a_{12}, \quad (35)$$

$$a_{22} = \chi^{(0)}(\mathbf{Q}) \quad (36)$$

となります。 $h \rightarrow +0$ の極限をとった訳ですから、式 (16) と式 (18) で定義した $E_{\mathbf{k}}^{\pm}$ と $D_{\mathbf{k}}$ に含まれる h はゼロです。式 (30) の関数形は、式 (28) と同じですが、 $\chi_n^{(0)}(\mathbf{Q})$ は、 $m_{\mathbf{Q}} = 0$ の時のみ $\chi^{(0)}(\mathbf{Q})$ に一致します。図 4 に $\chi_n(\mathbf{Q})$ の温度依存性をプロットしました。 T_{AF} 以上では、式 (28) と一致します。 T_{AF} 以下のネール状態では、温度を下げると $\chi_n(\mathbf{Q})$ は単調に減少します。ネール状態では交替スピン感受率は抑制されるべきですから物理的な結果です。図 6 に一次の導関数 $\left. \frac{\partial \mu}{\partial h} \right|_{h \rightarrow +0}$ を示しました。常磁性相では、一階微分はゼロであり、 h に関する一次の寄与はありません。しかし、磁性相に入ると、 h に関する一次項が現れることが分かります。特に、 $T = T_{\text{AF}}$ の低温側では発散します。この磁性相に現れる一次項の寄与は決して無視できる量ではありません。

5.2 化学ポテンシャルが一定の場合

次に化学ポテンシャルが一定という条件の下で、式 (20) と式 (21) を h に関して微分をして $h \rightarrow +0$ の極限を取ります。すると、

$$\chi_{\mu}(\mathbf{Q}) = \left. \frac{\partial m}{\partial h} \right|_{h \rightarrow +0} = \frac{1}{2} \frac{\chi_{\mu}^{(0)}(\mathbf{Q})}{1 - U\chi_{\mu}^{(0)}(\mathbf{Q})}, \quad (37)$$

$$\left. \frac{\partial n}{\partial h} \right|_{h \rightarrow +0} = \frac{1}{2} \frac{a_{12}}{\left(1 + \frac{U}{2}a_{11}\right) (1 - U\chi_{\mu}^{(0)}(\mathbf{Q}))} \quad (38)$$

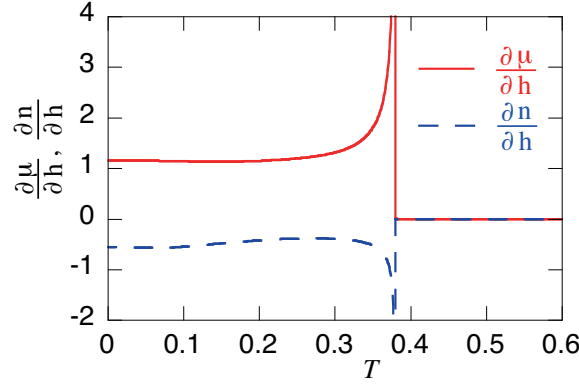


図 6: 外部磁場 h に関する μ と n の一階微分の温度依存性。ネール温度は $T_{\text{AF}} = 0.380$ でパラメタは $n = 1.1$ 、 $t' = -0.2$ 、 $U = 3$ です。

となり、

$$\chi_{\mu}^{(0)}(\mathbf{Q}) = a_{22} - \frac{U}{2} \frac{a_{12}a_{21}}{1 + \frac{U}{2}a_{11}} \quad (39)$$

という結果が得られます。式 (37) の関数形は電子数密度一定の時の式 (30) と同じです。しかし、 $\chi_{\mu}^{(0)}$ の表式は、電子数密度一定の時に得られた表式 $\chi_n^{(0)}$ (式 (32)) とは大きく異なっています。ただし、常磁性相の時、つまり $m_{\mathbf{Q}} = 0$ の時には $a_{12} = a_{21} = 0$ となりますので、両者は一致します。 $\chi_{\mu}(\mathbf{Q})$ の温度依存性を図 4 に示しました。この図では電子数密度は $n = 1.1$ と固定されていますので、化学ポテンシャルを調整して各温度で正しい $n = 1.1$ を再現するように調整しています。 T_{AF} 以下では、 $\chi_{\mu}(\mathbf{Q})$ は単調に抑制されており物理的には良さそうですが、正しい結果である $\chi_n(\mathbf{Q})$ を再現しません。この理由は、通常、多くの研究者が暗黙のうちに仮定していること、つまり、化学ポテンシャルが一定の条件で計算した感受率の式は正しい電子数密度を再現するように化学ポテンシャルを調整してやれば、電子数密度一定の系を記述出来るはず、という仮定が磁性相で破綻しているからです。実際、磁性相では、化学ポテンシャルを固定した条件で得た感受率である式 (37) と式 (39) は、電子数密度を固定した条件で得た感受率の式 (30) と式 (32)-(36) と異なっていますので、たとえ同じパラメタであっても一般に両者は異なる値になります。さらに、図 6 に示したように、 $\left. \frac{\partial n}{\partial h} \right|_{h \rightarrow +0}$ の温度依存性は、 $\left. \frac{\partial \mu}{\partial h} \right|_{h \rightarrow +0}$ のそれと大きく異なっています。化学ポテンシャルと電子数密度は対称な形で数式の中に入らないことから、それらの外部磁場に対する一階微分が一般に異なることは自然な結果です。それゆえに、 χ_n または χ_{μ} のいずれの感受率を用いるかは、記述したい系に応じて慎重に考える必要があります。少なくとも孤立した物質に対しては、電子数密度が固定されていますから [14]、 χ_n を用いる必要があります。

6 化学ポテンシャルを固定した場合

図 1 と図 4 では電子数密度を固定した場合のスピン感受率の温度依存性を示しました。それゆえに、 χ_n が正しい結果でした。多くの物質では、温度の関数としてサイトあたりの電子数が変化することは考えにくいと思われるかも知れませんが [14]、電荷浴に接したような場合、つまり化学ポテンシャルを固定した場合に対応する状況を近似的に考えることが出来

ます。例えば、フェルミ面を横切るバンドが複数あり、ある一つのバンドが大きな状態密度を持っており、スピン感受率に対してそのバンドからの寄与が支配的な場合を考えます。この時、そのバンドのみに注目してモデル化すれば、そのバンドは電荷浴に接していると考えられます。このような場合を想定して、化学ポテンシャルを固定した場合の縦スピン感受率の結果を、強磁性状態の場合とネール状態の場合を図 7(a) と (b) に各々示しました。この結果は、電子数密度を固定して得られた結果、図 1 と 4 と酷似していますが、ここでの正しい結果は χ_μ であって χ_n ではありません。

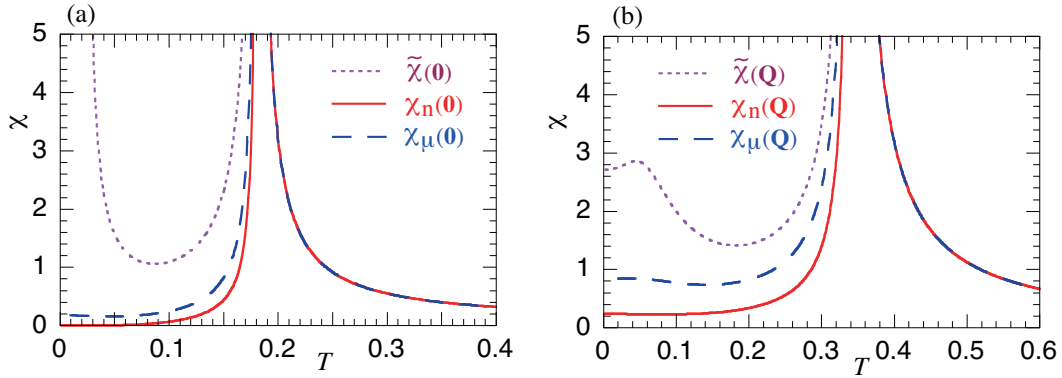


図 7: 化学ポテンシャルを固定した場合の縦スピン感受率の温度依存性で、低温で強磁性状態になる場合 (a) とネール状態になる場合 (b) を示しています。化学ポテンシャルは (a) では $\mu = -1.83$ として、 $T = 0.15$ で図 1 の時のパラメタ $n = 0.2$ を、一方 (b) では、 $\mu = 1.69$ として、 $T = 0.2$ で図 4 の時のパラメタ $n = 1.1$ を再現するようにしました。他のパラメタは $U = 3$ で、(a) では $t' = -0.45$ 、(b) では $t' = -0.2$ です。 χ_n に対しては、正しい化学ポテンシャルを再現するように、各温度で電子数密度を調整しています。しかし、この図において正しい結果は χ_μ です。

7 ファインマンダイアグラムの観点からの考察

今までは RPA のスピン帯磁率を平均場理論を用いて計算してきました。一方で、同じようなことをファインマンダイアグラムの観点からどのように理解されるを考察します。実際にスピン感受率の計算の際には、たとえ RPA の範囲であっても、平均場理論ではなくダイアグラムの手法を用いることが多いです。

縦スピン感受率の定義式は、

$$\chi^{zz}(\mathbf{q}, i\omega_m) = \frac{1}{N} \int_0^{1/T} d\tau e^{i\omega_m \tau} \langle T_\tau S^z(\mathbf{q}, \tau) S^z(-\mathbf{q}, 0) \rangle \quad (40)$$

として与えられます。ここで、 $\omega_m = 2m\pi T$ は松原振動数で m は整数で、演算子の τ 依存性は $S^z(\mathbf{q}, \tau) = e^{\tau \mathcal{H}} S^z(\mathbf{q}) e^{-\tau \mathcal{H}}$ として定義され、スピン演算子は電子の演算子を用いて $S^z(\mathbf{q}) = \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{k}\sigma} \sigma c_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma}$ と書けます。

常磁性相において χ^{zz} を RPA で評価すると、図 8 のようなダイアグラムで与えられます。アップスピン (ダウンスピン) に対応する単純バブルダイアグラムを $\chi_\uparrow(\mathbf{q}, i\omega_m)$ ($\chi_\downarrow(\mathbf{q}, i\omega_m)$)

と書けば、図 8 のダイアグラムは、

$$\chi^{zz}(\mathbf{q}, i\omega_m) = \frac{1}{4} \left(\frac{\chi_{\uparrow}(\mathbf{q}, i\omega_m) + \chi_{\downarrow}(\mathbf{q}, i\omega_m)}{1 - U^2 \chi_{\uparrow}(\mathbf{q}, i\omega_m) \chi_{\downarrow}(\mathbf{q}, i\omega_m)} + \frac{2U \chi_{\uparrow}(\mathbf{q}, i\omega_m) \chi_{\downarrow}(\mathbf{q}, i\omega_m)}{1 - U^2 \chi_{\uparrow}(\mathbf{q}, i\omega_m) \chi_{\downarrow}(\mathbf{q}, i\omega_m)} \right) \quad (41)$$

となります。第 1 項は図 8(a) の 1 番目のダイアグラムで、第 2 項はその 2 番目のダイアグラムに対応しています。ダイアグラムの実線は相互作用がない時の電子のグリーン関数 $\mathcal{G}_0(\mathbf{k}, ik_n) = \frac{1}{ik_n - \xi_{\mathbf{k}}}$ で与えられるので、 $\chi_{\uparrow}(\mathbf{q}, i\omega_m)$ と $\chi_{\downarrow}(\mathbf{q}, i\omega_m)$ の具体的な表式は容易に得られます。 $k_n = (2n + 1)\pi T$ は松原振動数で n は整数です。常磁性相では、 \mathcal{G}_0 はスピンに依存しないので、 $\chi_{\uparrow} = \chi_{\downarrow} = \chi_0$ となります。静的なスピン感受率は $i\omega_m = 0$ とおけば得られ、4 節で議論した一様スピン感受率は $\mathbf{q} = 0$ としたものの、5 節で議論した交替スピン感受率は $\mathbf{q} = \mathbf{Q}$ としたものになります。実際に χ_0 は、 $\mathbf{q} = 0$ の時は式 (23) と、 $\mathbf{q} = \mathbf{Q}$ の時は式 (29) と同じになることを確かめることができます。それゆえに常磁性相では式 (41) は

$$\chi^{zz} = \frac{1}{2} \frac{\chi_0}{1 - U\chi_0} \quad (42)$$

となって、一様スピン感受率の場合は式 (22) を、交替スピン感受率の場合は式 (28) を再現します。

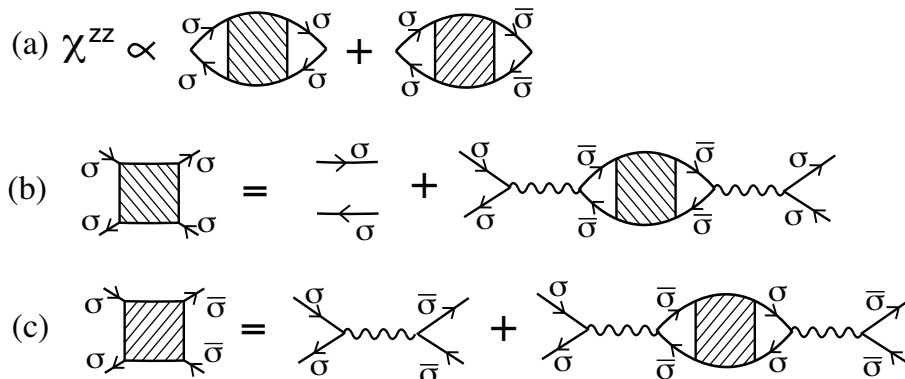


図 8: ハバード模型に対する縦スピン感受率のダイアグラム。 $\bar{\sigma}$ は σ とスピンの向きが反対であることを示しています。

磁気秩序相においては、電子のグリーン関数 $\mathcal{G}_0(\mathbf{k}, ik_n)$ を磁気秩序相での準粒子グリーン関数に置き換えることによって、上記の常磁性相での結果をそのまま応用出来ると思われるかも知れません。それに従うと、強磁性相では、アップスピンのグリーン関数は $\mathcal{G}_0^{\uparrow}(\mathbf{k}, ik_n) = \frac{1}{ik_n - \xi_{\mathbf{k}} + Um}$ と、ダウンスピンのグリーン関数は $\mathcal{G}_0^{\downarrow}(\mathbf{k}, ik_n) = \frac{1}{ik_n - \xi_{\mathbf{k}} - Um}$ と置き換えれば良いこととなります。その結果、式 (41) は式 (26)、つまり $\chi_{\mu}(0)$ を再現します。この結果は、文献 [8] や [10] ですすでに得られた結果です。ただし、電子数密度が一定の時の結果、式 (24)、つまり $\chi_n(0)$ を図 8 から導くことは出来ません。

強磁性相ではうまくいくので、ネール状態でも同様と思えるかも知れませんが、ネール状態では並進対称性が破れるので、それに伴って生じるウムクラブ散乱を考慮する必要があります。この効果によって、 $\langle T_{\tau} S^z(\mathbf{q}, \tau) S^z(-\mathbf{q} - \mathbf{Q}, 0) \rangle$ や $\langle T_{\tau} S^z(\mathbf{q} + \mathbf{Q}, \tau) S^z(-\mathbf{q}, 0) \rangle$ という寄与が一般には生じますが、これらは縦スピン感受率の場合はスピン和を取るとゼロになります [3]。したがって、強磁性の時の例にならって、電子のグリーン関数 $\mathcal{G}_0(\mathbf{k}, ik_n)$ をネー

ル状態での準粒子グリーン関数、つまり $\psi_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger = (c_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger, c_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}\sigma}^\dagger)$ という2成分演算子に対するグリーン関数

$$\hat{G}_0^\sigma(\mathbf{k}, ik_n) = \begin{pmatrix} ik_n - \xi_{\mathbf{k}} & \sigma U m_{\mathbf{Q}} \\ \sigma U m_{\mathbf{Q}} & ik_n - \xi_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}} \end{pmatrix}^{-1} \quad (43)$$

で置き換えてやれば良さそうです。ただし、並進対称性の破れのために \mathbf{k} は磁気ブリルアンゾーン ($|k_x| + |k_y| \leq \pi$) に制限されます。このような計算方法は、文献 [2, 3, 4, 5, 6] に見られます。しかしながら、この時、 $\chi_\uparrow(\mathbf{Q}, 0) = \chi_\downarrow(\mathbf{Q}, 0) = \chi^{(0)}(\mathbf{Q})$ となり、 $\chi^{(0)}(\mathbf{Q})$ は式 (29) で与えられます。その結果、RPAの交替スピン感受率は $\tilde{\chi}(\mathbf{Q})$ と同じになってしまいます。図4で論じたように、この結果は非物理的な結果を与え、ネール状態では正しい結果ではありません。

ネール状態での縦スピン感受率をダイアグラムを用いて正しく計算する方法は、研究者間でもあまり認識されていません。正しい計算方法は、ごく一部の文献 [16, 17, 18] に示されているに過ぎません。つまり、 $\langle T_\tau S^z(\mathbf{q}, \tau) \rho(-\mathbf{q} - \mathbf{Q}, 0) \rangle$ というウムクラップ散乱 ($\langle T_\tau S^z(\mathbf{q} + \mathbf{Q}, \tau) S^z(-\mathbf{q}, 0) \rangle$ ではない!) や、波数 $\mathbf{q} + \mathbf{Q}$ をもつ電子数密度の揺らぎである $\langle T_\tau \rho(\mathbf{q} + \mathbf{Q}, \tau) \rho(-\mathbf{q} - \mathbf{Q}, 0) \rangle$ の効果を取り入れる必要があります。電子数密度の演算子を

$$\rho(\mathbf{q}) = \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{k}} \sum_{\sigma} c_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger c_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}\sigma} = \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{k}}' \sum_{\sigma} \psi_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger \psi_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}\sigma} \quad (44)$$

と定義します。因子 1/2 は以下の数式をより単純化するために導入しました。電子数密度の効果を含めた RPA の表式は、

$$\hat{\chi} = \left(1 - \hat{\chi}_0 \hat{U} \right)^{-1} \hat{\chi}_0 \quad (45)$$

となつて、 $\hat{\chi}$ 付きの χ や U は

$$\hat{\chi} = \begin{pmatrix} \chi^{zz}(\mathbf{q}, i\omega_m) & \chi^{z\rho}(\mathbf{q}, \mathbf{q} + \mathbf{Q}, i\omega_m) \\ \chi^{\rho z}(\mathbf{q} + \mathbf{Q}, \mathbf{q}, i\omega_m) & \chi^{\rho\rho}(\mathbf{q} + \mathbf{Q}, i\omega_m) \end{pmatrix}, \quad (46)$$

$$\hat{U} = \begin{pmatrix} 2U & 0 \\ 0 & -2U \end{pmatrix} \quad (47)$$

という行列になります。 $\hat{\chi}$ の行列の要素は、

$$\chi^{z\rho}(\mathbf{q}, \mathbf{q} + \mathbf{Q}, i\omega_m) = \frac{1}{N} \int_0^{1/T} d\tau e^{i\omega_m \tau} \langle T_\tau S^z(\mathbf{q}, \tau) \rho(-\mathbf{q} - \mathbf{Q}, 0) \rangle, \quad (48)$$

$$\chi^{\rho z}(\mathbf{q} + \mathbf{Q}, \mathbf{q}, i\omega_m) = \frac{1}{N} \int_0^{1/T} d\tau e^{i\omega_m \tau} \langle T_\tau \rho(\mathbf{q} + \mathbf{Q}, \tau) S^z(-\mathbf{q}, 0) \rangle, \quad (49)$$

$$\chi^{\rho\rho}(\mathbf{q} + \mathbf{Q}, i\omega_m) = \frac{1}{N} \int_0^{1/T} d\tau e^{i\omega_m \tau} \langle T_\tau \rho(\mathbf{q} + \mathbf{Q}, \tau) \rho(-\mathbf{q} - \mathbf{Q}, 0) \rangle \quad (50)$$

として定義されます。 $\hat{\chi}_0$ は相互作用がない時の感受率に対応し、式 (43) のグリーン関数を用いて容易に計算することが出来ます。そして、 $i\omega = 0$ かつ $\mathbf{q} = \mathbf{Q}$ とすれば χ^{zz} は式 (37) を再現します。すなわち、 $\frac{\partial n}{\partial h}$ の効果は、電子数密度の相互作用からの寄与である $\chi^{z\rho}$ や $\chi^{\rho z}$ 、 $\chi^{\rho\rho}$ を考えることによって取り入れることが出来ます。

ダイアグラムを用いた方法はグランドカノニカルアンサンブルに対して定式化されています。それゆえに、化学ポテンシャルを固定した時の結果、式 (26) や式 (37) を再現出来るのは、然るべきことと言えます。問題は電子数密度を固定した時の結果、式 (24) や式 (30) をどうやって再現するかです。4 節と 5 節で示したように、磁気秩序相では、電子数密度を固定した時の縦スピン感受率は化学ポテンシャルを固定したものと本質的に異なります。通常、実際の物質では電子数密度が固定されていますから [14]、その条件下で磁気秩序相でスピン感受率を計算する一般的な処方箋を見出すことは重要な問題として残っています。次節で示すように、電子数一定の場合と化学ポテンシャル一定の場合の物理量はある関係式で結ばれていますから、まずその関係式を導き、次にダイアグラム法などで化学ポテンシャルが一定の条件下で物理量を計算し、その結果を用いて電子数一定の場合の物理量を逆算する、という方法が間違いのないやり方の一つですが、それはより直接的な処方箋とは言い難いと思われれます。

8 結果の一般性について

正方格子上の二次元ハバード模型を RPA で解析してスピン感受率の性質を議論してきました。その結果、電子数密度が一定の時と化学ポテンシャルが一定の時とで、磁気秩序相で縦スピン感受率が異なりました。この結果は、模型や次元、近似、格子形状には依存しない非常に一般的なものであると考えられます。それは、熱力学の教科書で書かれているように、体積一定の時の比熱と圧力一定の時の比熱が異なることと同じです。比熱の時の関係式の導出と同様なやり方によって、容易に以下に示す熱力学的な関係式を一般的に導くことが出来ます。

$$\chi_n = \chi_\mu + \frac{\partial n}{\partial h} \Big|_\mu \frac{\partial \mu}{\partial h} \Big|_n \quad (51)$$

第二項は、マクスウェルの関係式を用いれば、

$$\frac{\partial n}{\partial h} \Big|_\mu \frac{\partial \mu}{\partial h} \Big|_n = - \left(\frac{\partial n}{\partial h} \Big|_\mu \right)^2 \frac{\partial \mu}{\partial n} \Big|_h \quad (52)$$

と書け、 $\frac{\partial \mu}{\partial n} \Big|_h$ は系の安定性条件より常に正になるので、式 (52) は常にゼロ以下になります。したがって、式 (51) より

$$\chi_n \leq \chi_\mu \quad (53)$$

となります。以上の結果は、熱力学的原理のみを用いて導出した熱力学的関係式で、格子や系の次元には依存しません。また、強磁性状態でもネール状態でも、磁気秩序相の種類によらずに式 (51) は成り立っています。4 節や 5 節で得た結果、つまり図 1, 3, 4, 6 が、実際に式 (51) を満たしていることは、数値的に確かめることが出来ます。さらに解析的にも、式 (24), (25), (26), (27), 及び式 (30), (31), (37), (38) が、式 (51) を満たすことを確かめることが出来ます。さらに、図 3 と図 6 から明らかのように、 $\frac{\partial n}{\partial h} \Big|_\mu$ と $\frac{\partial \mu}{\partial h} \Big|_n$ は反対符号であり、式 (52) とも一致しています。熱力学的関係式 (51) で示されるこのような一般的な性質は、ほとんど認識されていません。実際、縦スピン感受率の計算において、 $\frac{\partial n}{\partial h}$ や $\frac{\partial \mu}{\partial h}$ の効果はしばしば無視されており、結果として明らかに物理的に誤った式 (22) や式 (28) が磁気秩序相でも用いられています [2, 3, 4, 5, 6]。

9 最後に

$\tilde{\chi}(0)$ (式 (22) と図 1) と $\tilde{\chi}(Q)$ (式 (28) と図 4) が磁気秩序相内の低温で増加する傾向を示しましたが、4 節と 5 節で議論したように、それは何らかの系の不安定性を示唆するものではなく、単に誤った感受率を用いた結果です。この振る舞いは、 $\frac{\partial n}{\partial h}$ や $\frac{\partial \mu}{\partial h}$ を無視したために、スピン感受率が磁気オーダーの発達に伴って抑制される効果が式の中に入っていないことに起因しています。そのため、磁気秩序の発達によって、 $\chi_{\uparrow} + \chi_{\downarrow}$ (式 (23)) 及び $\chi^{(0)}(Q)$ (式 (29)) の値がわずかに増加してしまい、その結果、RPA の感受率で見ると比較的大きな感受率の増大となって現れてしまうのです。無論、感受率が増大するだけでなく発散することもあり得ます。

ところで、温度を下げた時、磁気秩序相で感受率が増大することが常に非物理的かという点と必ずしもそうではありません。4 節や 5 節では、あくまで $\frac{\partial n}{\partial h}$ や $\frac{\partial \mu}{\partial h}$ の項を無視しているために誤りである、ということです。例えば、磁気秩序相が中間温度領域で生じて、高温部分と低温部分では常磁性相になるようなリエントラント転移が生じる場合、たとえ $\frac{\partial \mu}{\partial h}|_{h \rightarrow 0}$ や $\frac{\partial n}{\partial h}|_{h \rightarrow 0}$ の項を取り入れても、磁気秩序相内で温度を下げると感受率が再び増強することが期待されます。特に二次相転移で常磁性相に相転移する場合は、感受率は相転移点で発散します。

ここで議論してきた内容は、金属の物質で、化学ポテンシャルや電子数密度が外部磁場に関して一次に依存する項を持った時に適応可能です。そこで、どのような時に、その一次項が現れるかを直感的に理解しておくは重要です。実は、それは多くの場合、系の対称性を考えれば容易に分かります。思考実験の例を幾つか以下に示します。

例 1) 強磁性状態で磁化の応答を考えた場合、無限小の外部磁場を強磁性モーメントの方向と同じ向きに印加した時とその反平行、つまり $h \leftrightarrow -h$ とした時では、系の応答が異なることは直感的に明らかにです。これは、 h に関する一次項、すなわち $\frac{\partial \mu}{\partial h} \neq 0$ または $\frac{\partial n}{\partial h} \neq 0$ が存在していることを示しています。4 節の結果に対応したものになります。

例 2) ネール状態で例 1) と同じことを考えます。この時、無限小の様な外部磁場を反強磁性モーメントの方向に印加した時は、外場の向きを逆にしても、系の応答が同じであることは対称性から明らかです。すなわち、ネール状態で様な縦スピン感受率を考えた時は、 $\frac{\partial \mu}{\partial h} = 0$ または $\frac{\partial n}{\partial h} = 0$ となり $\chi_n = \chi_{\mu}$ です。しかし、ネール状態と同じ波数で変調する交替外部磁場を考えた場合、その外部磁場の向きを反転させると、系の応答は明らかに異なるはずで、 $\frac{\partial \mu}{\partial h} \neq 0$ または $\frac{\partial n}{\partial h} \neq 0$ となり、5 節の結果に対応します。

例 3) 例 1) と例 2) は縦スピン感受率の例です。つまり無限小の外部磁場と磁気モーメントの方向が同じ場合の例でした。では、横スピン感受率の場合はどうでしょうか。この場合、外場は磁気モーメントとは 90 度異なる方向に印加します。そこで、外場を h_{\perp} と記します。この時、強磁性状態でもネール状態でも、外場の向きを反転させても、つまり h_{\perp} でも $-h_{\perp}$ でも系の応答は対称性から同じはずで、数学的には、 $\frac{\partial \mu}{\partial h_{\perp}} = 0$ または $\frac{\partial n}{\partial h_{\perp}} = 0$ ということです。ゆえに、横スピン感受率を計算する際には、 $\chi_n = \chi_{\mu}$ となりますので、多くの文献 [8, 9, 3, 16, 4, 5, 18, 6] ですでに示されている計算は正しいこととなります。

例 4) 金属ではなく、絶縁体の場合はどうでしょうか。この場合は対称性ではなく、電荷励起にギャップが存在することがより本質的です。つまり、電荷ギャップによって $\frac{\partial n}{\partial h} = 0$ となり、 $\chi_n = \chi_{\mu}$ が得られますので、磁気秩序相におけるスピン感受率の計算において本解説で議論したような注意は必要ありません。この結果は、5 節の例からも理解できます。ネー

ル状態で絶縁体であれば、 \mathbf{k} に依存せず常に、 $E_{\mathbf{k}}^+ > 0$ かつ $E_{\mathbf{k}}^- < 0$ となります。したがって、絶対零度では、式 (20) より $n = 1$ となり、また式 (34) において $a_{12} = 0$ になりますので式 (38) より $\frac{\partial n}{\partial h} = 0$ であることが分かります。有限温度では、厳密には $\frac{\partial n}{\partial h}$ は有限になりますので、スピン感受率は電子数が一定の場合と化学ポテンシャルが一定の場合とで異なります。しかし、図 9 に見られるようにその違いは極めて小さく、式 (28)、式 (30)、式 (37) は T_{AF} 以下の有限温度であっても非常に良い近似で一致しています。

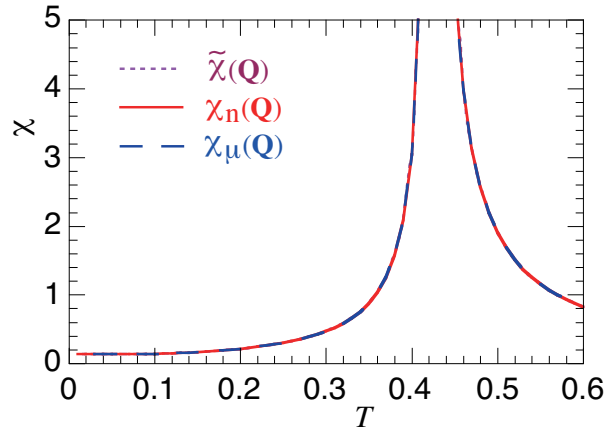


図 9: ハーフリング ($n = 1$) の系における縦スピン感受率の温度依存性。パラメタは $t' = -0.2, U = 3$ です。ネール温度 $T_{AF} = 0.423$ 以下であっても 3 種類のスピン感受率はほぼ等しく、 $T = 0$ では厳密に等しくなります。

その他、いくらでも例が考えられるでしょうが、上の思考実験を基にすれば他の場合であっても外場に対する一次項の存在の有無を判定することは容易なはずで。

最後に、本研究で得られた結果をどのように検証したらよろしいでしょうか。電子数密度が一定の場合と化学ポテンシャルが一定の場合の 2 つの場合のスピン感受率を比較する必要があります。本研究の結果は、模型や近似、格子形状、次元には依存しないので、最も数値的なシミュレーションが容易な模型を用いてテストを行うのがベストと思われます。実際の物質を用いる場合も最もスピン感受率の測定がしやすい金属磁性物質を用いれば良いです。通常の方法でスピン感受率を測定すると、電子数密度が一定の場合に対応します [14]。化学ポテンシャル一定の時のスピン感受率は、その物質を金属などの何らかの電荷浴に接触させて感受率を測定することになります。現在のナノテクノロジーを駆使すれば実験は実現可能ではないかと期待しています。 χ_n と χ_μ の違いは式 (51) で与えられる、というのが本研究の予言になります。その定量的な相違はおそらく物質に依存するはずで、図 1、4、7 の例では、特にネール状態で大きな相違が見られています。

10 まとめ

二次元ハバード模型での縦スピン感受率を例にとって、磁気秩序相での感受率の計算を議論してきました。磁気秩序相ではスピンの回転対称性が破れますので、無限小の外部磁場をスピンの方向と平行に印加すると、化学ポテンシャル μ または電子数密度 n は外場の一次に比例する項を持つことがあります。この効果は多くの文献で考慮されておりませんが、スピ

ン感受率の計算には極めて重要で、電子数密度を固定した場合と化学ポテンシャルを固定した場合で感受率の結果が異なるようになります。電子数密度を固定した場合の正しい表式を、強磁性状態とネール状態の場合に各々、式 (24) と式 (30) に記しました。一方、化学ポテンシャルを固定した場合の正しいスピン感受率は、式 (26) と式 (37) となります。電子数密度を固定した場合と化学ポテンシャルを固定した場合のスピン感受率の表式は磁性相では異なるので、たとえ正しい電子数密度 (化学ポテンシャル) を再現するように化学ポテンシャル (電子数密度) を調整しても、化学ポテンシャル (電子数密度) を固定して計算したスピン感受率を用いて電子数密度 (化学ポテンシャル) が固定されている系を正しく記述することは出来ません。磁性相においてスピン感受率の持つこのような性質は、扱う模型、格子の形状、系の次元、計算の近似などに依存しない一般的なものであり、熱力学的には式 (51) の関係式で与えられます。本理論結果は金属磁性に適用出来る知見です。絶縁体に対しては、常に $\left. \frac{\partial n}{\partial \mu} \right|_h = 0$ ですから、電子数密度を固定するとか、化学ポテンシャルを固定するとかに注意を払う必要はなく、どちらの場合も同じ結果が得られます。

11 謝辞

本研究の問題設定をする際に、大変に有意義な議論をして頂いた長谷川泰正先生に深く感謝申し上げます。倉本義夫先生、林正彦先生、三宅和正先生には、本研究を進める中で度々議論をして頂き、著者らは研究を続ける意義を再認識出来ました。最後に、本研究の位置づけについて議論していただいた Pawel Jakubczyk 先生、Pavel Ostrovsky 先生に深く感謝申し上げます。山瀬は、科研費 15K05189 による助成によって本研究を進めることが出来ました。

参考文献

- [1] 芳田奎, 磁性 (岩波書店, 1991 年).
- [2] J. B. Sokoloff, Phys. Rev. **185**, 770 (1969).
- [3] J. R. Schrieffer, X. G. Wen, and S. C. Zhang, Phys. Rev. B **39**, 11663 (1989).
- [4] A. P. Kampf, Phys. Rep. **249**, 219 (1994).
- [5] J. Knolle, I. Eremin, A. V. Chubukov, and R. Moessner, Phys. Rev. B **81**, 140506(R) (2010).
- [6] W. Rowe, J. Knolle, I. Eremin, and P. J. Hirschfeld, Phys. Rev. B **86**, 134513 (2012).
- [7] K. Kuboki and H. Yamase, Phys. Rev. B **96**, 064411 (2017).
- [8] T. Izuyama, D. J. Kim, and R. Kubo, J. Phys. Soc. Jpn. **18**, 1025 (1963).
- [9] K. Ueda, J. Phys. Soc. Jpn. **44**, 1533 (1978).
- [10] T. Moriya, *Spin Fluctuations in Itinerant Electron Magnetism* (Springer, Berlin, 1985).

- [11] H. Mukuda, S. Shimizu, A. Iyo, and Y. Kitaoka, J. Phys. Soc. Jpn. **81**, 011008 (2012).
- [12] G. R. Stewart, Rev. Mod. Phys. **83**, 1589 (2011).
- [13] C. Pfleiderer, Rev. Mod. Phys. **81**, 1551 (2009).
- [14] 本解説では「サイトあたりの電子数」を「電子数密度」と表現しているので、系の体積変化があっても「電子数密度」は変化しない。
- [15] P. A. Igoshev, M. A. Timirgazin, A. A. Katanin, A. K. Arzhnikov, and V. Yu. Irkhin, Phys. Rev. B **81**, 094407 (2010).
- [16] A. V. Chubukov and D. M. Frenkel, Phys. Rev. B **46**, 11884 (1992).
- [17] 文献 [16] の式 (52) の分子に $+U[\chi_{\mathbf{Q}}^{z\rho}(\mathbf{q}, \omega)]^2$ という項が記載されていますが、それは $-U[\chi_{\mathbf{Q}}^{z\rho}(\mathbf{q}, \omega)]^2$ であるべきです。
- [18] H.-J. Lee and T. Takimoto, J. Phys. Soc. Jpn. **81**, 104704 (2012).