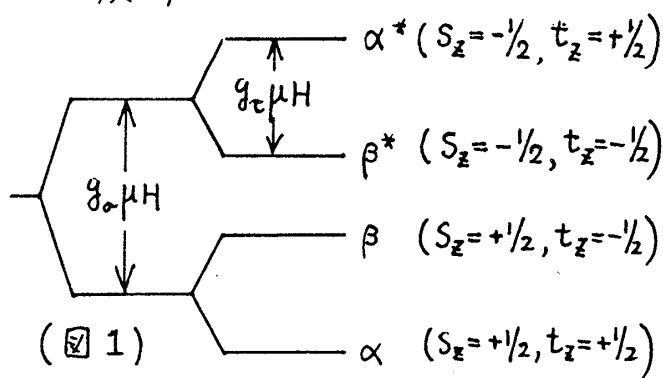


Dense Kondo系における軌道縮退の効果

東大 物性研 大川 房義

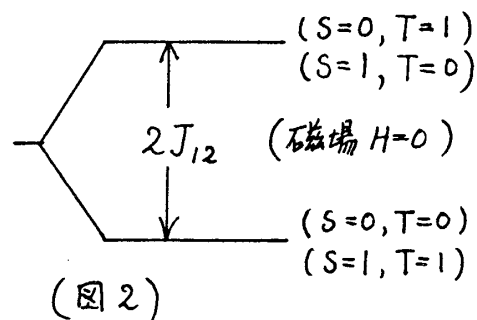
先に $U \rightarrow +\infty$ の周期的アンダーソンハミルトニアンを議論した。サイト当りの f 電子数が 1 に近い場合の結論は次の様である。高温では各サイトの f レベルは独立的に振舞う、いわゆる Dense Kondo 的振舞いが期待できる。各々のサイトで形成した一重項基底状態の束縛エネルギーは温度の低下と共に対数的に減少し、低温ではついにサイト間の相互作用に負ける。但し、交換相互作用が強磁性的である時は低温で秩序相が実現する事は難しく、交換相互作用が反強磁性的な時に磁気的秩序相の実現が期待される。この議論では f レベルの軌道縮退は無視されているが、縮退が残る場合も当然考えられる。ここでは f レベルが4重に縮退しているとして軌道縮退の効果を考える。但し、高温では軌道縮退を考慮しても Dense Kondo 的振舞いで定性的な違いはないので、ここでは低温の秩序相のみを考える。したがって交換相互作用は反強磁性的な場合であり、その大きさは、今問題にしている温度で、各サイトで一重項基底状態を作る束縛エネルギーより大きい場合である。



まず4重の f レベルを軌道部分とスピン部分に分ける。z軸に平行に磁場を印加した場合の f 電子の固有状態を α, α^*, β と β^* とする。ここで $\alpha^*(\beta^*)$ は α (β) に時間反転の変換をした状態である。磁場中での4つのレベルのエネルギー間隔は図1で与えられる。 (α, β) と (α^*, β^*) との各々の空間に同じく働くパウリの行列 τ ($\tau = 1/2$) が軌道部分の演算子で、

(α, α^*) と (β, β^*) との各々の空間に同じく働くパウリの行列 σ がスピン部分の演算子である。

次に2サイトに f レベルがあるハミルトニアンで擾動計算をして交換相互作用を計算する。エネルギーレベルは2サイトの全スピンの大きさにより、図2の様に分類できる。



$$\mathcal{S} = \sigma_1 + \sigma_2 ; \quad \mathcal{T} = \tau_1 + \tau_2 , \quad (1)$$

この計算では軌道の対称性から消えるべき項は消し去る。すなわち、軌道の違いによる行列要素の差は無視した。図2のエネルギーダイヤグラムを再現する様にスピンハミルトニアンを求め、周期的な系に拡張すると次の有効ハミルトニアンを得る。

$$H_{eff} = \sum_{\langle ij \rangle} \frac{1}{2} J_{ij} [(\sigma_i \cdot \sigma_j) + (\tau_i \cdot \tau_j) + 4(\sigma_i \cdot \sigma_j)(\tau_i \cdot \tau_j)] + \sum_i [g_o \mu (\sigma_i \cdot H) + 2g_c \mu (\sigma_i \cdot H)(\tau_i \cdot H)/H] \quad (2)$$

但し、ここで定数部分は除いており、交換相互作用は伝導電子を媒介としたRKKY的のものであり長距離相互作用である。ゼーマン項に於て g_0 と g_c は等方的であるとした。

この有効ハミルトニアンは磁場が存在しない時($H=0$)ではスピンと軌道にフリて対称であるが、実際の系では軌道自由度は格子の歪みと結合しているためJahn-Teller効果を考える必要がある。そのため軌道秩序相がより高温で起こる事が期待される。したがって、軌道縮退が残り、かつ f 電子数が1に近い価数揺動状態で交換相互作用が反強磁性的である場合は、まず軌道のanti-ferro秩序が起こる。そして場合により、より低温でスピンの秩序が起こる。

以上のモデルを、 CeB_6 に適用し、その実験事実を軌道縮退の効果として解釈する可能性を以下で議論する。その理由は、まず実験結果が通常の反強磁性秩序相とは大分違う事が第一。又、比熱の結果から求めたエントロピーは比較的低温で $k \ln 4$ を越える事。又、point chargeモデルで結晶場の効果を考えると、4重項 T_8 が基底状態となる事などが挙げられる。 CeB_6 の T_8 に対しては $g_0 = -2$, $g_c = -8/7$ と計算できる。実験で観測されている3つの相は高温側から、I相はパラ相、II相は軌道anti-ferro相でIII相はスピンのanti-ferro相と解釈するのが自然である。

この解釈に従って、まず温度-磁場平面(T_c-H_c)でのI-II相境界線を考える。スピンに関してはパラであるから

$$\phi_i \approx \frac{1}{2} (H/H) \tanh\left(\frac{g_0 \mu H}{2kT}\right), \quad (3)$$

と近似して、分子場近似を用いた計算では、 $\mu(H_c/H_c) > 0$ となる。又、 $T_c=0$ となる臨界磁場は非常に大きく、 $300 \sim 500$ kG以上と見積られる。これは、スピンのフェロ的に並び、有効ハミルトニアンの中の $(\phi_i \cdot \phi_j)(\pi_i \cdot \pi_j)$ のため π スピン間に働く有効交換相互作用が大きく存在するためである。同じ理由によりII相では、スピンのフェロ的に存在した方が得る。で同様磁場に対する帯磁率が大きく存在する事が言える。又、II相に於ては $H=0$ では何の磁気的秩序も存在しないが、 $H \neq 0$ ではフェロ的のmagnetic momentの発達と共にanti-ferro的のmagnetic momentも生じる事も自然に導ける。以上の理論的帰結は実験事実と矛盾していない。

実験で得られたI-II相の転移温度と、II-III相の転移温度に大きな違いがある事から、Jahn-Teller効果はあまり大きくないと推定できる。

ここでは低温の秩序相のみを議論したが、高温での物理量を問題にする時は少し注意が必要である。最初に述べた様に高温では、各々のサイトで一重項を形成する束縛エネルギーが交換相互作用よりも大きい。しかも、その束縛エネルギーは温度の上昇と共に対数的に大きくなる。