

# 薄膜のランダウ反磁性と密度行列

穴戸文雄

電気電子工学科

Landau Diamagnetism in a Thin Film and Density Matrix

Fumio SHISHIDO

## Abstract

The unified theory of Landau diamagnetism for both in thin film and in large system is developed on the basis of the density matrix. The density matrix for thin film is solved by Laplace transform. It is clarified why the steady terms of both agree. This method makes possible to calculate the 2-dimensional susceptibility, which leads to the result of great interest that there appears an oscillating term of an enormous magnitude.

Key Words: Density matrix for thin film, Enormous 2-dimensional moment,

## 1. 序

薄膜の Landau 反磁性に関しては多くの研究がある。Papapetrou, Friedman [1, 2, 3] は個々の電子の磁気モーメントを摂動で求めた。全電子の寄与で決まる全モーメントに関する彼等の結果は高次の振動項が正しく取り扱われず不完全であった。Nedorezov [4, 5, 6, ] は正しい結果を与えた。その結果、平均の帯磁率は Landau 帯磁率に正確に一致し、厚さによる振動は相対振幅  $\sim 1$  の程度である。 $H \rightarrow 0$  で 磁気長  $\gg$  膜厚 のときは摂動が厳密な結果を与え、この問題にいつも付随する特異点の困難は無いという明快さがある。他方つぎの問題点がある [7]。

- 1) 結果が何故 Landau 帯磁率に正確に一致するのかの物理的解釈が未だに無い。
- 2) 摂動では無限個の準位からの寄与が関数の関係式を使い求まる。これは最も簡単なポテンシャル即ち無限高の階段ポテンシャルだから偶然に可能になっておりわずかの一般化も期待出来ない。
- 3) 全電子の寄与も関数の関係式を使い計算される。計算結果よりも  $\sim N^3$  大きい項が  $(\pi^2/15) \sum (1/n^2) - \sum (1/n^4) = 0$ , という式で消えるという風に、やや一般的なポテンシャル での見通しが全く立たない。

この論文ではこの3つの問題を解決するため密度行列を使う。二つの解決法を示す。

1a) 波動関数の厳密な相似性から密度行列  $Z(\beta)$  の関数形の制限が導かれる。

2a)  $Z(\beta)\beta^m$  は  $m$  を適当に選ぶとラプラス変換で解析できる。

この二つの解決法により、上記の 1), 2), 3), の問題点は完全に解決されることを示す。

## 2. 密度行列とモーメント

磁気モーメント  $M(\mu, H, T)$  は  $M(\mu, H, 0)$  とゆるやかな重率関数との積の積分で表される [7, 9]。さらに三次元の  $M(\mu, H, 0)$  は二次元の  $M(\mu - p_z^2/2m, H, 0) dp_z$  の重ね合わせである。このため以下の議論は全て  $T=0$  での二次元の  $M(\mu, H)$  に限る。

磁気モーメント  $M(\mu, H, 0)$  はポテンシャル  $Q = \sum E_i(H) - N(\mu, H)\mu$  の微分である。

$$-M(\mu, H) = \frac{\partial}{\partial H} [\sum E_i(H) - N\mu] = \frac{\partial}{\partial H} \sum [E_i(H) - \mu] = \sum \frac{\partial}{\partial H} E_i(H), \quad \text{但し } E_i(H) \leq \mu. \quad (1)$$

分配関数  $Z(\beta, H)$  は次式で定義される。

$$Z(\beta, H) = \sum \exp[-\beta E_i(H)]. \quad (2)$$

これは状態密度関数  $\rho(E, H) = \sum \delta[E - E_i(H)]$ , を使っても書ける。

$$Z(\beta, H) = \int \rho(E, H) \exp(-\beta E) dE.$$

(1) と (2) を比較して、

$$\frac{1}{\beta^2} \frac{\partial}{\partial H} Z(\beta, H) = - \int M(\mu, H) \exp(-\beta \mu) d\mu. \quad (3)$$

この関係が議論の基礎となる。

## 3. 波動関数の相似性

一個の電子のモーメント  $m(H, E, a)$  を考える。(a: 軌道中心と界面の距離)

$$m(NH, NE, a/\sqrt{N}) = Nm(H, E, a)$$

が厳密に成立する [7, 9]。左辺の波動関数は右辺に較べて厳密に相似であり、 $1/\sqrt{N}$  に圧縮されている。従って  $M(\mu, H, L)$  に関しては、(L: 薄膜の厚さ)

$$M(N\mu, NH, L/\sqrt{N}) = \sqrt{N} M(\mu, H, L)$$

が成立する。従って  $M$  の関数形は

$$M(\mu, H, L) = L^{-1} h_1(HL^2, \mu/H) = HL h_2(HL^2, \mu/H) \quad (4a)$$

これを  $\mu$  に関してラプラス変換したものは、

$$\text{Laplace}[M(\mu)] = (HL/\beta) h_3(HL^2, \beta H) \quad (4b)$$

これを (4) と較べて

$$-\partial Z(\beta, H, L)/\partial H = (HL\beta) h_4(HL^2, \beta H) \quad (4c)$$

$H \rightarrow 0$  のときこれは  $\propto H$  であること分かっているので、

$$-\partial Z(\beta, H, L)/\partial H \rightarrow (HL\beta) h_5(\beta/L^2) \quad (4d)$$

## 4. 密度行列と分配関数

密度行列の二次の摂動から分配関数の二次は次式であらわされる。

$$\frac{1}{4(2\pi\beta)^{1/2}} \int_0^\beta dt \int dx dX G(X; x; t) (x-X)^2 G(x; X; \beta-t). \quad (5)$$

ここで  $G(x; X; t)$  は  $H=0$  のときの密度行列である。界面が存在しないときの密度行列  $G_0$  は [8, 10]、

$$G_0(x; X; \beta) = (2\pi\beta)^{-1/2} \exp[-(x-X)^2/2\beta]. \quad (6)$$

この場合 (5) は簡単に計算できる。界面が存在する一般の場合 (5) の計算は非常に難しい。(5) の積分を  $Y(\beta, L)$  と書き、帯磁率を  $\chi(\mu, L)$  と書いて ( $M = \chi H$ ) (3) と (5) を整理する。

$$Y(\beta, L) = \int_0^\beta dt \int dx dX G(X; x; t) (x-X)^2 G(x; X; \beta-t). \quad (7)$$

$$\frac{1}{2(2\pi\beta)^{1/2}\beta^{3/2}}Y(\beta, L) = -\int \chi(\mu, L)\exp(-\beta\mu)d\mu. \quad (8)$$

$\chi(\mu, L)$  と  $Y(\beta, L)$  の関数形を調べるために (4a), (4d) を使い、

$$\chi(\mu, L) = Lh_6(\mu L^2). \quad (9a)$$

$$Y(\beta, L) = L\beta^{3/2}h_7(\beta/L^2) = L^4h_8(\beta/L^2). \quad (9b)$$

$Y(\beta, L)$  を  $\beta$  に関してラプラス変換する。  $G(X; x; \beta) = G(x; X; \beta)$ , のときは

$$\int_0^\infty d\beta \exp(-\gamma\beta) \int_0^\beta dt G(t) G(\beta-t) = \left[ \int_0^\infty d\beta \exp(-\gamma\beta) G(\beta) \right]^2 \quad (10)$$

が成立するので  $Q(\gamma, L) \equiv \text{Laplace}[Y(\beta, L)]$  は

$$Q(\gamma, L) = \int dx dX (x-X)^2 \left[ \int_0^\infty dt \exp(-\gamma t) G(t) \right]^2. \quad (11a)$$

と、右辺は同じ積分の二乗という簡単な形になる。なお  $Q(\gamma, L)$  の関数形は (9b) から、

$$Q(\gamma, L) = L^6 h_9(\gamma L^2) \quad (11b)$$

界面が存在しないときの  $G_0$  に関しては (7) から、先ず  $x, X$  について積分、その後  $t$  について積分、最後にラプラス変換した結果と、(11) から最初に一変数のラプラス変換を求め、その後  $x, X$  について積分した結果との両者は簡単に計算でき一致することを示す。下記の変形ベッセル関数の積分公式を利用する。

$$\int_0^\infty \exp\left[-t - \frac{z^2}{4t}\right] t^{n-1} dt = 2\left(\frac{z}{2}\right)^n K_n(z) \quad (12)$$

この公式は  $n > -1/2$  の場合に成立する。適当な収束因子をかけて  $n < -1/2$  にも拡張できるので以後それを適用する。(8) から分かるように最終結果は (11) の逆変換に  $\beta^{-3/2}$  をかけたものであるから問題は無い。 $n = -1/2$  のときの (12) に (6) を代入して、

$$F_0(|x-X|; \gamma) = \int d\beta \exp(-\gamma\beta) G_0(|x-X|; \beta) = (2\gamma)^{-1/2} \exp[-(2\gamma)^{1/2}|x-X|] \quad (13)$$

という簡単な形になり、(11) の計算は簡単である。

次に界面が存在する場合を考える。無限大階段ポテンシャルを仮定する。すなわち

$$U(x) = 0, \quad |x| < L/2; \quad U(x) = \infty, \quad |x| > L/2.$$

$G(x; X; \beta)$  は鏡像法により  $G_0(|x-X|; \beta)$  の和で表される。

$$G(x; X; \beta) = \sum G_0[(x-X) + 2nL; \beta] - \sum G_0[(x+X-L) + 2nL; \beta] \quad (14)$$

対応するラプラス変換は (13) の和で表される。

$$F(|x-X|; \gamma) = f(x-X; \gamma) - f(x+X-L; \gamma), \quad \text{但し } f(x-X; \gamma) = \sum F_0[(x-X) + 2nL; \gamma] \quad (15)$$

(13) を (15) に代入して、

$$0 < u < 2L, \quad f(u; \gamma) = a^{-1} [1 - \exp(-2aL)]^{-1} \{ \exp(-au) + \exp[a(u-2L)] \}, \quad \text{但し } a = (2\gamma)^{1/2}. \quad (16)$$

$f(u; \gamma)$  は周期  $2L$  の周期関数である。これを (11a) に代入して、

$$\begin{aligned} Q(\gamma, L)/2 &= \int_0^L dv \int_0^v du \cdot u^2 [f(u; \gamma) - f(v; \gamma)]^2: \quad u = (x-X), v = (x+X-L). \\ &= L \int_0^L f^2 u^2 du - \frac{2}{3} \int_0^L f^2 u^3 du - 2 \int_0^L f u^2 \left[ \int_u^L f(v) dv \right] du. \end{aligned}$$

第二項を部分積分して、

$$= \int_0^L \{ Lf^2 + 2 \int_0^u [f(v)]^2 dv - 2f \left[ \int_u^L f(v) dv \right] \} u^2 du - \frac{2}{3} L^3 \int_0^L f^2 du.$$

結果は、

$$\begin{aligned} &[1 - \exp(-2aL)]^2 Q(\gamma, L) \\ &= \frac{L}{2a^5} \{ 1 - 3(aL)^{-1} + \left[ \frac{4}{3}(aL)^3 + 8(aL) + 6(aL)^{-1} \right] \exp(-2aL) - [1 + 3(aL)^{-1}] \exp(-4aL) \}. \quad (17a) \end{aligned}$$

$\mu L^2 \gg 1$  の場合を考えているので  $aL \gg 1$  としてよい。この条件では

$$Q(\gamma, L) = \frac{L}{2a^5} + \frac{2L^3}{3a^2} \frac{\exp(-2aL)}{[1 - \exp(-2aL)]^2} = \frac{L}{2a^5} + \frac{2L^3}{3a^2} \sum n \exp(-n2aL) \quad (17b)$$

の計算が必要十分であることを以下に示す。(17a)の右辺の第一項が主要項であり界面が無いときの値に一致する。主要項から  $\chi(\mu, L)$  への寄与の計算は簡単である。まず  $Y(\beta, L)$  を求める。次に (8)の左辺  $Y_2(\beta, L) = Y(\beta, L)/2(2\pi\beta)^{1/2}\beta^2$  を求める。その後  $Y_2(\beta, L)$  の Laplace変換  $Q_2(\gamma, L)$  および  $Y_2(\beta, L)$  の Laplace逆変換  $\chi(\mu, L)$  が求まる。(8)の左辺に  $(2\pi\beta)^{-1/2}$  をかけると三次元の場合の式になるので、三次元の  $Q_3(\gamma, L)$  と  $\chi_3(\mu, L)$  も同時に求まる。結果を下表前半に示す。後半はそれ以後の結果を予め示す。

$$\begin{array}{ccccccc} Q(\gamma, L) & \rightarrow Y(\beta, L) \rightarrow Y_2(\beta, L) & \rightarrow Q_2(\gamma, L) & & \rightarrow \chi(\mu, L) & & \\ & & \rightarrow Y_3(\beta, L) \rightarrow Q_3(\gamma, L) & & \rightarrow \chi_3(\mu, L) & & \\ \frac{L}{2a^5} = \frac{L}{2(2\gamma)^{5/2}} & \rightarrow \frac{L\beta^{3/2}}{6(2\pi)^{1/2}} & \rightarrow \frac{L\beta^{-1}}{24\pi} & & \rightarrow \frac{L}{24\pi} & & \\ & & \rightarrow \frac{L\beta^{-3/2}}{24(2\pi)^{1/2}} & & \rightarrow \frac{L(2\mu)^{1/2}}{24\pi^2} & & \\ Q(\gamma, L) = \frac{2L^3}{3a^2} \frac{\exp(-2aL)}{[1 - \exp(-2aL)]^2} & \rightarrow Y(\beta, L) = \frac{1}{48(2\pi)^{1/2}} \sum \frac{1}{n^3} \frac{(2nL)^6}{(2naL)^{3/2}} K_{-3/2}(2naL) & & & & & \\ \rightarrow \chi(\mu, L) \frac{L}{24\pi} \left[ \frac{(2\mu)^{1/2}}{\pi^{1/2}} \right]^{1/2} g[2(2\mu)^{1/2}L] & \rightarrow \chi_3(\mu, L) = \frac{L(2\mu)^{1/2}}{24\pi^2} \left\{ \frac{(x-2\pi[z/2\pi])^2}{8} - \frac{x^2}{24} \right\} & & & & & \end{array}$$

(17a)の右辺の第三項以降で  $\exp(-2aL) \rightarrow 0$  としてはいけない。この因子は  $\chi(\mu, L)$  に  $\cos(\sqrt{\mu}L)$  の振動項の存在を示唆する。対応する  $Y(\beta, L)$  の形を探するとき  $G_0(x; X; \beta)$  を Laplace変換して  $F_0(|x-X|; \gamma)$  が現れたことが示唆となる。(9b)が示す関数形  $Y(\beta, L) = L^4 h_8(\beta/L^2)$  を参考に次の項を仮定する。

$$Y(\beta, L) = (2L)^4 \exp(-2L^2/2) (4L^2/\beta)^{n+1} \quad (18a)$$

この Laplace変換  $Q(\gamma, L)$  は公式 (12)により

$$Q(\gamma, L) = 2(2L)^6 (2aL)^n K_n(2aL), \quad \text{但し } a = (2\gamma)^{1/2}. \quad (18b)$$

対応する  $Y_2(\beta, L)$  は

$$Y_2(\beta, L) = Y(\beta, L)/2(2\pi\beta)^{1/2}\beta^2 = (8\pi)^{-1/2} (2L)^{-1} \exp(-2L^2/2) (4L^2/\beta)^{n+7/2} \quad (18c)$$

この Laplace変換  $Q_2(\gamma, L)$  は

$$Q_2(\gamma, L) = (2\pi)^{-1/2} 2L(2aL)^{n+5/2} K_{n+5/2}(2aL) \quad (18d)$$

同様に三次元の  $Y_3(\beta, L)$  とその Laplace変換  $Q_3(\gamma, L)$  は

$$Y_3(\beta, L) = Y(\beta, L)/4\pi\beta^3 = (4\pi)^{-1} (2L)^{-2} \exp(-2L^2/2) (4L^2/\beta)^{n+4} \quad (18e)$$

$$Q_3(\gamma, L) = (2\pi)^{-1} (2aL)^{n+3} K_{n+3}(2aL) \quad (18f)$$

(17a)の右辺の第三項に対応して  $n = -3/2$  を (18b)に代入する。次の公式

$$K_{-3/2}(2aL) = (\pi/2aL)^{1/2} \exp(-2aL) [1 + (2aL)^{-1}] \quad (19)$$

を参照して

$$Q(\gamma, L) = [1/24(2\pi)^{1/2}] 2(2L)^6 (2aL)^{-3/2} K_{-3/2}(2aL) \quad (20a)$$

とすると  $\alpha(aL)^{-1}$  の誤差で第三項に一致する。これに対応して

$$Y(\beta, L) = [1/24(2\pi)^{1/2}] (2L)^4 \exp(-2L^2/2) (4L^2/\beta)^{-1/2} \quad (20b)$$

$$Y_2(\beta, L) = (1/96\pi) (2L)^{-1} \exp(-2L^2/2) (4L^2/\beta)^{-2}$$

$$Q_2(\gamma, L) = (1/48\pi) 2L(2aL) K_1(2aL)$$

$$Y_3(\beta, L) = [1/48(2\pi)^{3/2}] (2L)^{-2} \exp(-2L^2/2) (4L^2/\beta)^{5/2}$$

$$Q_3(\gamma, L) = [1/24(2\pi)^{3/2}] (2aL)^{3/2} K_{3/2}(2aL)$$

Laplace逆変換で  $\chi(\mu, L)$  を求めよう。  $K_n(z)$  の積分表式 (12) で積分路を実軸から虚軸に移したものが逆変換に使える。

$$\frac{1}{2\pi i} \int_{-\infty-i}^{\infty-i} \exp\left[t - \frac{z^2}{4t}\right] t^{-n-1} dt = \left(\frac{z}{2}\right)^n J_n(z) \quad (21)$$

(21), (12) を比べ  $Q_2(\gamma, L)$  での  $K_n(z)$  を  $(1/2)J_n(z)$  に置き換えて  $\chi(\mu, L)$  が得られる。

$$\begin{aligned} \chi(\mu, L) &= (1/96\pi) 2L(2(2\mu)^{1/2}L) J_1(2(2\mu)^{1/2}L) \\ &\sim -(1/24\pi^{3/2})(2\mu)^{1/4} L^{3/2} \cos(2(2\mu)^{1/2}L) \end{aligned} \quad (22a)$$

$$\begin{aligned} \chi_3(\mu, L) &= [1/48(2\pi)^{3/2}](2(2\mu)^{1/2}L)^{3/2} J_{3/2}(2(2\mu)^{1/2}L) \\ &\sim -(1/48\pi^2)(2\mu)^{1/2} L \cos(2(2\mu)^{1/2}L) \end{aligned} \quad (22b)$$

次に (17a) の左辺の因子  $[1 - \exp(-2aL)]^2$  を考える。上記の計算が示すように  $Q(\gamma, L)$  から  $Y_2(\beta, L)$  へ変換するとき  $\exp(-2aL)$  の因子を持つ項は、持たない項に較べて  $\sim (aL)^{-5/2}$  だけ小さくなる。従ってこの因子の (17a) の主要項への影響は無視できる。ところが第三項には大きく影響する。第三項は既に  $\exp(-2aL)$  の因子を持つので、第三項  $\times 1$  と 第三項  $\times \exp(-2aL)$  は  $Y_2(\beta, L)$  への寄与が同程度である。従って (17b) の計算が必要十分であるとの結論が得られた。(17b) の第一項は上記に計算した。第二項の無限級数の初項の寄与は上記の (22a), (22b) である。次に無限級数を詳しく計算する。

$$\frac{2L^4}{3a^2} \sum n \exp(-n2aL) = \frac{8}{3} \sum \frac{1}{n^3} \frac{(nL)^6}{(n2aL)^2} \exp(-n2aL) \quad (23)$$

と変形でき (20a) に対応して

$$Q(\gamma, L) \rightarrow \sum n^{-3} Q(\gamma, nL)$$

とすればよいことが分かる。従って

$$\chi(\mu, L) \rightarrow \sum n^{-3} \chi(\mu, nL), \quad \chi_3(\mu, L) \rightarrow \sum n^{-3} \chi_3(\mu, nL)$$

(22a), (22b) に対応して

$$\chi(\mu, L) \propto \sum n^{-1} J_1(nz), \quad \chi_3(\mu, L) \propto \sum n^{-3/2} J_{3/2}(nz), \quad \text{但し } z = 2(2\mu)^{1/2}L$$

を計算すればよい。  $\chi_3(\mu, L)$  は計算できる。

$$\propto \sum n^{-3/2} J_{3/2}(nz) \propto \sum n^2 \cos(nz) = (\pi - 2\pi[z/2\pi])^2 / 4 - \pi^2 / 12,$$

ここで  $[\ ]$  はガウスの記号  $[z/2\pi] = z/2\pi - \text{Integer}(z/2\pi)$  である。

従って (22b) に対応して

$$\chi_3(\mu, L) \sim -(1/48\pi^2)(2\mu)^{1/2} L [(\pi - 2\pi[z/2\pi])^2 / 4 - \pi^2 / 12], \quad z = 2(2\mu)^{1/2}L \quad (24)$$

主要項に対する比率は

$$[(\pi - z)^2 / 8 - \pi^2 / 24]$$

となり  $[\ ]$  に一致する。

$\chi(\mu, L)$  の計算は難しい

$$\propto \sum n^{-1} J_1(nz) \propto \sum n^{-3/2} \cos(nz) = g(z) \quad (25)$$

$J_{3/2}$  を  $\cos$  で置き換える式は  $\propto (aL)^{-1}$  を無視する限り正確である。ところが  $J_1$  を  $\cos$  で置き換える式は例え  $\propto (aL)^{-1}$  を無視しても正確ではない。従って上記の無限和はさらなる吟味を必要とする。  $g(z)$  を初等関数で表すことはできない。その最大と最小を見積もると

$$z = 2\pi \quad \text{最大} = \sum n^{-3/2} = 1 + \int_{3/2}^{\infty} x^{-3/2} dx = 1 + \frac{2}{3} \sqrt{6} = 2.63$$

$$z = \pi \quad \text{最小} = \sum (-1)^n n^{-3/2} = -\sum n^{-3/2} + 2 \sum (2n)^{-3/2} = (-1 + \frac{1}{\sqrt{2}}) \sum n^{-3/2} = 0.77$$

ここまでの議論で三つの意義深い結果が得られた。

- 1) 薄膜と大きな系とが密度行列の観点から統一的に論じられ何故両者の平均値が一致するのかが解明された [11-15]。
- 2)  $Z(\beta)\beta^m$  の  $m$  を適当に選ぶとこれは Laplace変換できて解析できる。
- 3) 今までは計算困難であった二次元の系が解けて巨大な振動項の存在が解明された。

### References

- [1] Papapetrou, A. :Z. Phys. **107**(1937)387.
- [2] Papapetrou, A. :Z. Phys. **112**(1939)587.
- [3] Friedman, L. :Phys. Rev. **134**, (1964)A336.
- [4] Nedorezov, S. S. : JETP **37**, (1973)317.
- [5] Nedorezov, S. S. : JETP LETT **33**, (1981)215.
- [6] Nedorezov, S. S. : Sov. J. LTPJETP **6**, (1981)449.
- [7] Shishido, F. : Phys. Lett. A **152**, (1991)443.
- [8] E. H. Sondheimer and A. H. Wilson:Proc. Roy. Soc. A **210**(1951)173.
- [9] Shishido, F. :Phys. Lett. A **152**, (1991)427.
- [10] K. Ohtaka and T. Moriya, J. Phys. Soc. Jpn. **34**(1973)1203.
- [11] U. Sivan and Y. Imry, Phys. Rev. Lett. **61**(1988)1001.
- [12] V. A. Grazhulis, Solid. State. Comm. **79**(1991)917.
- [13] M. Calvo, J. Phys. C **19**(1986)7253.
- [14] Azbel, M. Y. :Phys. Rev. Lett. **82**, 2, (1999)422.
- [15] M. Steinberg, W. Ebeling and J. Ortner:Phys. Rev. E **61**, 3(2000)2290.