

論文の内容の要旨

論文題目

Novel Magnetic Orders in Frustrated Continuous Spin Systems

(フラストレート連続スピン系における新奇な磁気秩序)

氏名 田村 亮

フラストレーションはスピン間相互作用の競合によって生じる。フラストレーションのある系では、全ての相互作用エネルギーを最小化することができない。その影響で従来型の磁気秩序が抑えられる。このように、低温まで磁気秩序が抑えられることにより、新奇な相転移や非従来型の磁気秩序の出現など興味深い物性が出現する。近年、新奇な磁気秩序の出現が報告されたフラストレート物質である三角格子磁性体 NiGa_2S_4 [S. Nakatsuji *et al.*, *Science* **309**, 1697 (2005).] およびランダム磁性体 $\text{Sr}(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)\text{O}_2$ [L. Seinerberg *et al.*, *Inorg. Chem.* **50**, 3988 (2011).] に着目し、フラストレーションが引き起こす相転移や磁気秩序に関する理論研究を行った。実験結果や第一原理計算の先行研究および、Goodenough-金森則から総合的に考察し、磁性体の格子構造や相互作用の特徴をそれぞれ反映した有効的な連続スピンモデルを構築した。これらの連続スピンモデルでは、フラストレーションの効果によって以下の磁気構造が出現する。

- (i) 格子の離散的回転対称性が破れたスパイラルスピン状態
- (ii) 面間ランダム相互作用の効果によって現れるランダムファンアウト状態

これらの磁気秩序における共通の特徴は、フラストレーションの効果によってスピン配置に空間異方性が現れることである。また、構築したモデルが示す磁気秩序の特徴から現れる有限温度相転移をモンテカルロ法を用いて調査した。さらに、実験結果と得られた数値計算の結果の整合性について考察し、両者の関連について議論した。その結果、構築したモデルは NiGa_2S_4 で観測された磁気ピークの波数を再現できるが、有限温度の性質に関しては説明できないことが分かった。一方で、 $\text{Sr}(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)\text{O}_2$ の低温相のスピン配置は、ランダムファンアウト状態で説明できることが分かった。

格子の離散的回転対称性が破れたスパイラルスピン状態 (学位論文第二章)

NiGa₂S₄ は $S = 1$ のハイゼンベルクスピンを持つ二次元性の高い三角格子磁性体である．この物質では，低温においてスピンの非整合な短距離秩序（数サイト程度のスピン相関）の存在を示す磁気ピークが観測されている．この非整合な磁気秩序を記述する波数ベクトルは，強磁性的最近接相互作用 (J_1) と反強磁性的第三近接相互作用 (J_3) の競合によって説明することができる．これらの相互作用のある三角格子上の連続スピンモデルのハミルトニアンは以下のように書ける．

$$\mathcal{H} = J_1 \sum_{\langle i,j \rangle_{\text{最近接}}} \mathbf{s}_i \cdot \mathbf{s}_j + J_3 \sum_{\langle i,j \rangle_{\text{第三近接}}} \mathbf{s}_i \cdot \mathbf{s}_j.$$

このモデルの基底状態は解析計算によって厳密に求めることができ，格子の離散的回転対称性が破れたスパイラルスピン状態 (図 1) が基底状態である．

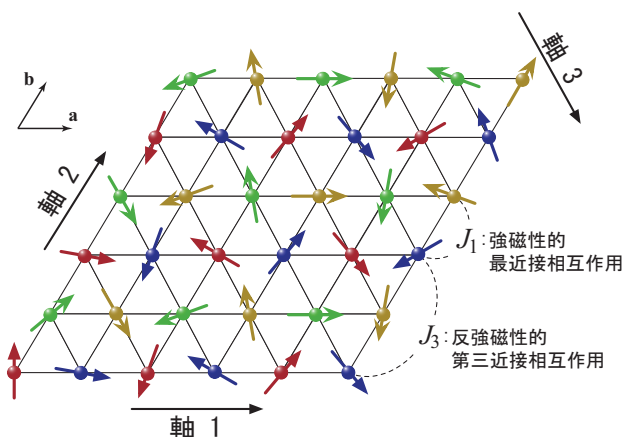


図 1: $J_1/J_3 \simeq -0.73425685$ の場合の離散的回転対称性が破れたスパイラルスピン状態の模式図．軸 1 に沿った最近接スピン間の角度が 100° ，その他の軸に沿った角度が 50° になっている．

離散的回転対称性が破れたスパイラルスピン状態

このスピン配置では，一つの軸に沿ったスピン間の角度が他の軸と異なっており，スピンの連続回転によって移り変わることでない三重縮退が存在している．つまり，このスピン配置は格子の 120° 回転対称性が破れたスパイラルスピン状態である．私はこのモデルの先行研究として，相互作用比が $J_1/J_3 = -1/3$ の場合について調査した [R. Tamura and N. Kawashima, J. Phys. Soc. Jpn. 77, 103002 (2008).]．しかし，この相互作用比では，現れるスピン構造が非整合なスパイラルスピン状態であるため，熱力学極限の議論において困難が生じる．そのため本論文では，このモデルが示す本質的な物性を明らかにするために，整合なスパイラルスピン状態が基底状態となる相互作用比 $J_1/J_3 \simeq -0.73425685$ を用いた研究を行った．モンテカルロ法によって得られた比熱に対する有限サイズスケーリングの結果 (図 2) から，熱力学極限における有限温度一次相転移の存在を確かめた．また，一次相転移温度以下では，スピン相関長は数百サイト以上の長さになることが分かった．さらに，この一次相転移点では，モデルの秩序変数空間に関連した Z_2 渦対の解離および格子の離散的回転対称性の破れが同時に起こる．つまり，このモデルで起こる一次相転移は，基底状態の性質（離散的回転対称性が破れたスパイラルスピン状態）を直接反映した有限温度相転移である．

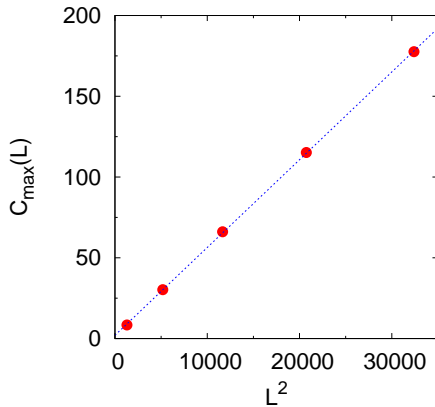


図2：各格子サイズ L における比熱の最大値 $C_{\max}(L)$ に関する有限サイズスケールリングプロット．格子サイズ L の2乗（空間次元）でフィッティングすることができ、これは熱力学極限で一次相転移が起こることを示している．このフィッティング線の傾きから潜熱 l を求めることができ、 $l/J_3 = 0.070(1)$ と見積もられる．

このモデルの基底状態のスピン配置は相互作用比の値を調節することによって三角格子磁性体 NiGa_2S_4 で観測された磁気ピークの波数を説明できる．しかし、 NiGa_2S_4 は相転移を示さず、また低温における相関長は数サイト程度と短いため、 NiGa_2S_4 における非整合な短距離秩序はこのモデルでは説明することができないと考えられる．以上の結果は以下の出版論文において報告した．

[1] R. Tamura and N. Kawashima, J. Phys. Soc. Jpn. **80**, 074008 (2011).

面間ランダム相互作用の効果によって現れるランダムファンアウト状態（学位論文第三章）

ランダム磁性体 $\text{Sr}(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)\text{O}_2$ は平面四配位構造を持つ SrFeO_2 [Y. Tsujimoto *et al.*, Nature **450**, 1062 (2007).] の Fe イオンを Mn イオンにランダム置換することによって合成される．Mn イオン濃度の値を 30 % ($x = 0.3$) にすると、低温で $(\pi\pi\pi)$ と $(\pi\pi 0)$ の磁気ピークが同時に観測される混合相が出現する．しかし、これまでの理論研究では、この二つの波数ベクトルによって記述される磁気秩序の存在は報告されていなかった．したがって、 $\text{Sr}(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)\text{O}_2$ の磁気秩序の理解には、同様の磁気ピークの波数を再現できる理論モデルの構築および解析が必要であると考えた．平面四配位構造では、面内 (ab 面内) と面間 (c 軸) 方向で相互作用の起源が異なるため、これらの相互作用を区別した有効モデルを導入する必要がある．有効モデルとしてこれらの相互作用の特徴を捉えられる立方格子上的サイトランダム連続スピンモデルを構築した．構築したハミルトニアンは以下のように書ける．

$$\mathcal{H} = J \sum_{\langle i,j \rangle_{\text{面内}}} \mathbf{s}_i \cdot \mathbf{s}_j + J \sum_{\langle i,j \rangle_{\text{面間}}} \sigma_{ij} \mathbf{s}_i \cdot \mathbf{s}_j.$$

このモデルは二種類のイオンを立方格子の上にランダムに配置することによって形成される． σ_{ij} はイオンの配置に依存して ± 1 の値をとる．モンテカルル口法を用いた数値計算の結果、相図中に $(\pi\pi\pi)$ と $(\pi\pi 0)$ の波数ベクトルが共存する混合相を発見した (図3)．

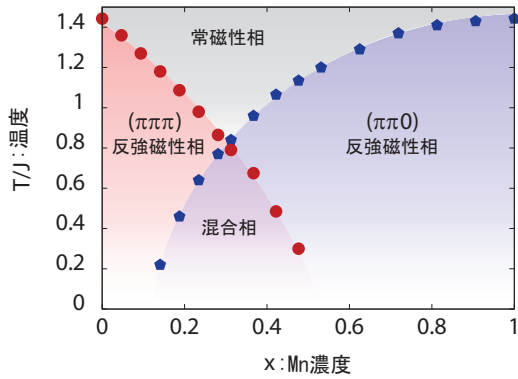


図3: Mn 濃度 (x)– 温度 (T/J) 相図 . 赤丸は, $(\pi\pi\pi)$ 秩序変数で特徴づけられる相境界, 青五角形は, $(\pi\pi0)$ 秩序変数で特徴づけられる相境界をそれぞれ表している . また, 混合相は $(\pi\pi\pi)$ と $(\pi\pi0)$ の波数ベクトルが同時に観測される相である .

この相図から, 温度を下げることによって, 常磁性相 \rightarrow $(\pi\pi\pi)$ または $(\pi\pi0)$ 反強磁性相 \rightarrow 混合相という逐次相転移が起こることが分かる . このとき, 高温側および低温側の二次相転移はそれぞれ三次元ハイゼンベルクモデルおよび三次元 XY モデルのユニバーサリティクラスに属している . また, この混合相のスピンの配置は図4に示したランダムファンアウト状態である .

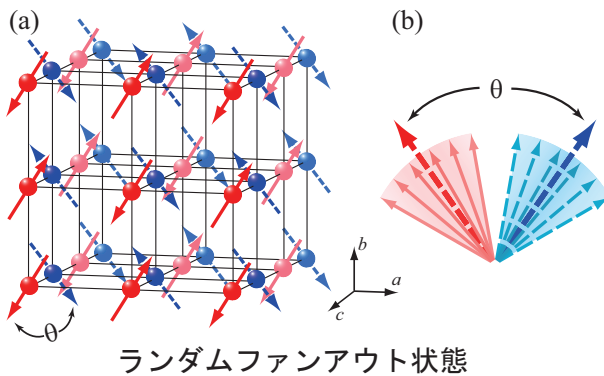


図4: ランダムファンアウト状態の模式図 . (a) 偶数層および奇数層のスタaggerド磁化ベクトルを用いて描いたスピン配置 . (b) 各スピンはランダム相互作用の影響から, 磁化ベクトルの周りで扇状に分布する .

スタaggerド磁化ベクトルを用いて描いたスピン配置は図4 (a) のような磁気構造であり, 面内 (ab 面内) は Néel 秩序を形成している . このスピン配置の特徴は, 面間 (c 軸) 方向の磁化ベクトルが平行または反平行に揃わず, Mn 濃度に依存した角度 θ だけ傾いている点である . さらに, 面間ランダム相互作用の影響から, 各スピンは磁化ベクトルの周りに扇状に分布する (図4 (b)) . このように, このモデルではバルクのスピン配置によって $(\pi\pi\pi)$ と $(\pi\pi0)$ の波数ベクトルが共存する . この磁気構造はフラストレーション系においてしばしば現れるスパイラルスピン状態とは異なり, ランダム相互作用の効果によって誘発される新しい種類の磁気秩序である . また, リートベルト解析から, このスピン配置は $\text{Sr}(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)\text{O}_2$ ($x = 0.3$) の中性子散乱の磁気強度をよく再現できることがわかった . したがって, $\text{Sr}(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)\text{O}_2$ の混合相では, ランダムファンアウト状態が出現していると予想している . 以上の結果は以下の出版論文において報告した .

[1] R. Tamura and N. Kawashima, J. Phys.: Conf. Ser. **320**, 012025 (2011).
 [2] R. Tamura, N. Kawashima, T. Yamamoto, C. Tassel, and H. Kageyama, Phys. Rev. B **84**, 214408 (2011).