

博士論文

カイラルらせん磁性体の平衡状態と ヒステリシスの理論

Theory of thermodynamic states and hysteresis of
chiral helimagnets

2017年度

東京大学 総合文化研究科
広域科学専攻 相関基礎科学系

学籍番号：31-157910

篠嵯 美沙子

目次

第 1 章	はじめに	1
1.1	背景	1
1.1.1	カイラル磁性体	1
1.1.2	理論	2
1.1.3	実験	3
1.2	研究の目的・論文の構成	4
第 2 章	カイラルらせん磁性体の理論と計算手法	5
2.1	一次元カイラルらせん磁性体	5
2.1.1	らせん磁性体	5
2.1.2	一次元カイラルらせん鎖の解析	6
2.2	有限温度カイラルらせん磁性体のモデルと数値計算手法	8
2.2.1	三次元格子上のカイラルらせん磁性体のハミルトニアン	8
2.2.2	平均場近似の定式化	9
2.2.3	数値計算のアルゴリズム	10
2.3	極限の振る舞いと CrNb_3S_6 のパラメーター評価	11
2.3.1	絶対零度におけるカイラルサインゴルドンモデルとの比較と臨界磁場の DM 相互作用依存性	11
2.3.2	ゼロ磁場でのモンテカルロの結果と転移温度の J^\perp 依存性	12
2.3.3	CrNb_3S_6 のパラメーター評価	14
第 3 章	カイラルらせん磁性体の相図	16
3.1	相図	16
3.1.1	相図のパラメーター依存性	17
3.1.2	一様相におけるクロスオーバーライン	17
3.2	相転移の種類と物理量	19
3.2.1	磁化曲線	19
3.2.2	比熱の温度依存性	21
3.2.3	エントロピー	23
3.3	相転移の次数の評価と一次転移の観測可能性	25
3.3.1	三重臨界点の評価	25
3.3.2	多重臨界点の評価	26
3.3.3	一次転移のクロスオーバー	28
3.3.4	一次転移の観測可能性	28
3.4	孤立ソリトンの解析と相転移	31
3.4.1	漸近形の解析	31
3.4.2	孤立ソリトンの振る舞いと相転移の種類	33

3.5	h_0 ラインとカイラルファン構造	35
3.5.1	孤立ソリトンの存在領域	35
3.5.2	カイラルファン領域近傍における磁気構造の温度変化	36
3.5.3	らせん構造とカイラルファン構造	39
3.5.4	DM エネルギーとゼーマンエネルギーの競合	39
3.6	本章のまとめ	41
第 4 章	準安定状態とヒステリシス	43
4.1	らせんの両端の効果に起因するヒステリシス	43
4.1.1	系の表面におけるエネルギーバリア	43
4.1.2	数値計算の手法と自由エネルギーのプロファイル	46
4.1.3	減磁過程におけるヒステリシス	48
4.1.4	実験との比較	50
4.1.5	エネルギーバリアの見積もり	52
4.2	磁壁の生成と磁壁の構造	53
4.2.1	数値計算の手法	53
4.2.2	磁壁の生成・消滅	56
4.2.3	磁壁の大きさ	58
4.2.4	磁壁のエネルギー	60
4.3	本章のまとめ	62
第 5 章	まとめと展望	63
5.1	本研究の成果と意義	63
5.2	今後の展望	64
	謝辞	65
補足 A	カイラルサインゴルドンモデル	66
A.1	連続体近似	66
A.2	拡張カイラルサインゴルドンモデル	70
補足 B	平均場方程式の導出	75
補足 C	モンテカルロ法と平均場近似のハイブリッド法	78
C.1	2dMC-1dMF の定式化	78
C.2	2dMC-1dMF の数値計算の手法	79
C.3	転移温度の定量性の評価 ～3dMF, 2dMC-1dMF, 3dMC の比較～	79
C.4	磁場中での有限温度効果 ～相図・磁化・比熱それぞれの 3dMF, 2dMC-1dMF, 3dMC の比較～	80
補足 D	比熱と帯磁率の表式	83
D.1	一様相における比熱と帯磁率の表式	83
D.2	秩序相内の比熱の解析的な表式	84
D.2.1	準備	84
D.2.2	比熱の解析的な表式	87

D.2.3 解析的・数值的に求めた比熱の比較	92
補足 E 三重臨界点	95
参考文献	107

第1章 はじめに

1.1 背景

1.1.1 カイラル磁性体

カイラリティとは、人間の掌に代表されるような、鏡像と実像が重なり合わない一対の構造を指すものである。三次元らせん構造は、カイラルな構造の一例である。カイラリティを持つものは、自然界に多く存在しており、例えば巨大なスケールでいうと、銀河や台風などは、回転方向が定められたカイラルな構造である。身近なものでは、我々人間のDNAや、水晶(右水晶・左水晶)などもカイラルな構造を持つ物質として有名である。物性分野では、液晶や、カイラルナノチューブといった物質がカイラルな構造を持つと知られているが、近年ではカイラリティを持つ磁性体にも注目が集まっている。磁性体は、結晶中の局在磁気モーメントが秩序をもって整列し、巨視的な磁氣的性質を生じさせるものである。カイラリティをもつ磁気秩序構造は、カイラル磁性と呼ばれ、結晶の構造カイラリティに由来する。カイラル磁性体は近年多く発見されており、その磁気構造の安定性と、外部磁場を用いた構造制御性の高さから、将来的な技術応用を見据えた研究が盛んに行われている [1]。

カイラル磁性は、ジャロシンスキー・守谷 (Dzyaloshinskii-Moriya: DM) 相互作用とよばれる相互作用を用いて記述できる [2,3]。具体的なカイラル磁性体としては、立方晶系の MnSi, FeGe、六方晶系の CrNb₃S₆、三方晶系の YbNi₃Al₉ などが存在する。対称性の高い立方晶系のカイラル磁性体は、DM 相互作用が多方向に作用する。このような系では、磁場中でスキルミオン (もしくはスカーミオン: skyrmion) と呼ばれる磁気モーメントの渦構造が生じる [4-6]。スキルミオンは実験的にも観測が多くされており (MnSi [7-10], FeGe [11-14], Cu₂OSeO₃ [15])、相図や物理量の振る舞いといった基礎的な研究から、スキルミオンの動的性質などの応用にいたる研究まで (理論 [16-21], MnSi [22-26], FeGe [27-29])、幅広い議論が進められている。

一方、六方晶系や三方晶系などの、対称性がより低い結晶構造で発現するカイラル磁性では、DM 相互作用が一軸方向に強くなり、広い領域で一様ならせん秩序が発現する。このような磁気秩序を持つ磁性体は、カイラルらせん磁性体 (chiral helimagnet) と呼ばれ、守谷・宮台らが具体的な物質として CrNb₃S₆ を発見している [30-32]。カイラルらせん磁性体にらせん軸に垂直な外部磁場をかけると、らせんが周期的にほどけ、空間的に局在したらせん構造 (ソリトン) が周期的に並んだ、カイラルソリトン格子 (chiral soliton lattice) を低温で組むことが知られている。これらの構造は、CrNb₃S₆ を用いて、実験的に直接観察されている [1, 33-35]。この実験により、カイラルらせん構造や、カイラルソリトン格子構造が、結晶の厚みの変調や、試料の欠け、結晶欠陥などに対して非常に強固であることが分かり、薄膜試料を用いた観測では、数 μm 四方程度の比較的広い領域において、一様な磁気構造が安定して存在することが示されている [33]。

1.1.2 理論

理論的には、カイラルらせん磁性体を、カイラルサインゴルドンモデルと呼ばれる一次元モデルによって解析する理論研究が盛んに行われてきた [36–41]。このモデルでは、非線形な磁気構造であるカイラルソリトン格子構造も、楕円関数を用いて解析的に記述することができる [38, 40]。Dzyaloshinskii は、カイラルらせん磁性体の物理量の振る舞いを解析し、特異な二次転移をする系であることを示している [38]。例えば、臨界磁場 H_c 近傍の秩序相側において、磁化の傾きが $1/[(H_c - H) \log^2(H_c - H)]$ の関数で発散することなどが見出されている [38]。また、岸根らは現象論的に温度効果を取り入れ、転移点で磁化の温度依存性にピークが出ることを示した [40, 42]。低温でカイラルらせん磁性体に発現する相転移は、de Gennes [43] が核生成型 (nucleation type) に分類する二次転移であると考えられる。この二次転移は、イジングモデルやハイゼンベルグモデルなどに代表される、不安定型 (instability type) の二次転移とは性質を異にする。de Gennes の分類によると、不安定型の二次転移では、小さな秩序変数 (例えば強磁性ハイゼンベルグモデルでは磁化) を用いて、ランダウ理論に基づいた相転移の解析が可能であるのに対し、核生成型の二次転移はこのような秩序変数が定義できない [43]。例えば第二種超伝導体の混合状態からマイスナー状態への相転移も核生成型の二次転移に分類され、磁化が混合状態側から下部臨界磁場 H_{c1} に向かって傾きが $1/[(H - H_{c1}) \log^3(H - H_{c1})]$ で表される発散の振る舞いを示すことが知られている [44]。核生成型の二次転移では、対数発散する物理量をスピン変数や超伝導秩序変数を変数とする通常のランダウ理論から導き出すことは困難である。

カイラルサインゴルドンモデルは一次元のモデルであるため、有限温度の振る舞いを正しく取り扱うことができない。近年では、現象論的な理解を超えて、三次元系のカイラルらせん磁性体を平均場近似やモンテカルロシミュレーションなどを用いて解析し、温度効果をより正確に調べる試みが活発に行われている [45–50]。

相転移を理解する上で有効なのが、ギンツブルグーランダウ (GL) 理論である。Schaub, Mukamel らは、一般に無秩序相-不整合相 (disordered-incommensurate) 転移を発現する物質全般について、GL 理論を用いた解析を行っている [45]。この理論はカイラルらせん磁性体だけでなく、一般にらせん秩序を呈する磁性や、グラファイト層間化合物、 $2H\text{-TaSe}_2$ などの層状構造にも広く適用可能である。このような系では、核生成型、不安定型の二種類の二次転移と、それらに挟まれた領域に一次転移が存在し、これらの相転移の種類は孤立ソリトンを用いて理解できることが示されている [45, 51–53]。

転移点を含め、より広い温度・磁場領域において有効なのが、平均場近似の手法である。篠崙らは、三次元格子上的カイラルらせん磁性体のモデルを用いて、ゼロ磁場の系でモンテカルロ計算を行い、カイラルらせん磁性体 CrNb_3S_6 のパラメーターを評価した (参考文献 [46] および本論文 2.3 節)。これにより、 CrNb_3S_6 がらせん軸に垂直な二次元平面内の相互作用が強い、擬二次元な構造を呈していることが定量的に示され、一次元カイラルサインゴルドンモデルを用いた解析の妥当性が示された。また、Lalena らは斜め磁場を含めたカイラルらせん磁性体の相図を導出している [47–49]。しかし、ソリトン解析を含めた広い温度・磁場領域における相図の議論はされておらず、クロスオーバーを含めたカイラルらせん磁性体の平衡状態の完全な理解にはまだ至っていないというのが現状である。

一方、平均場や GL 理論は熱ゆらぎの効果を無視した近似を用いているため、定量性を失う。モンテカルロシミュレーションは系統誤差を含まずに熱力学量を評価し得る計算手法であるため、実験との直接比較が可能であるなど、強力な解析手法の一つである。しかし、カイラルらせん磁性体の系に関しては、特に磁場中で多数の準安定状態が存在するため、計算コストが膨大となる。

この点で、カイラルらせん磁性体は計算物理の分野における発展も必要とされる興味深い対象である。篠崎らは平均場近似とモンテカルロ計算とを組み合わせた手法を開発し、この系に有効な計算手法であることを示した [46]。また、西川、福島は、イベントチェーン (event-chain) モンテカルロ法を用いた、磁場中カイラルらせん磁性体のモンテカルロ計算に成功し、臨界指数の評価を含む相転移の性質について調べている [50,54]。西川らの評価によると、低磁場側、高磁場側に転移の種類異なる二次転移が存在するとしているが、一次転移の存在は示されていない [50]。

平均場近似や GL 理論を用いた解析では一次転移の存在可能性が示されるが、これは一次転移の存在を保証するものではない。平均場近似は熱ゆらぎの効果を無視しているため、熱ゆらぎを取り入れることにより一次転移の領域が消滅する可能性もある。しかし、もし一次転移が熱ゆらぎの効果によって消滅しないならば、その観測可能性を評価しておく必要がある。

1.1.3 実験

実験的には、磁化の振る舞いの変化 [55,56] や、エントロピー [57] の測定により、一次転移や相転移の振る舞いが増える臨界点を示唆する研究報告がある。鶴田らは交流磁化の振る舞いが高磁場と低磁場で異なることを示し、低磁場領域における一次転移の存在可能性を示唆している [55]。また、Clements らはエントロピーの振る舞いを観測し、低磁場における挙動の変化が Laliena らによって理論的に示された一次転移の存在と対応するとしている [57]。しかし、現時点で一次転移の存在は実験的には確立していない。実験的に一次転移の証拠をつかむためには、一次転移や臨界点において、物性にどのような顕著な特性が現れるのかを理論的に提示する必要がある。

一方、低温・高磁場領域では、守谷、宮台が、磁化曲線にヒステリシスが生じることを理由に、一次転移を示唆している [30,31]。しかし磁化曲線に見られるヒステリシスは有限サイズ効果によるものであるという実験結果が、近年いくつか報告されている [58,59]。有限サイズのカイラルらせん磁性体では、離散的な要素であるソリトン数が重要な役割を果たす。微小な試料を用いた実験で、磁化曲線や抵抗曲線に、ソリトン数の増減に対応するステップ状の振る舞いと、それに伴うヒステリシスが多数観測されている [35,58,60]。美藤らは試料の境界条件を変化させたときに、磁化曲線に現れるヒステリシスの幅が大きく変化することを実験的に示した [59]。薄膜試料ではソリトンの侵入が阻害され、磁場を下げていく過程において大きなヒステリシスが生じるが、 c 軸 (らせん軸) の端に厚みがある試料においては、ソリトンの侵入が促され、ヒステリシスの幅が狭くなる [59]。また、ヒステリシスループ内では、磁場を変化させても磁化や抵抗曲線が可逆となり、ソリトン数の保存や制御が、この領域で実現されることが示唆されている [1,59]。

ソリトン数が変化する際に物理量にステップ状の振る舞いが出ることは理論的にも示されているが [61,62]、この現象とヒステリシスとの関連について理論的に解析した研究はまだ存在しない。ヒステリシスを論じるには、準安定状態の解析が必要となるからである。ソリトン数を変化させる際には、らせん軸方向からソリトンを出入りさせるプロセスと、らせん軸に垂直方向からソリトンを出入りさせるプロセスの二つが主に考えられる。らせん軸方向からのソリトンの出入りには、系の端の効果が重要になり、またらせん軸に垂直方向からソリトンが出入りする際には、磁壁 (domain wall) の生成が必要であると考えられる。立方晶系については系の端の効果 [63] や、磁壁 [64,65] (もしくは転位: dislocation [66]、または回位: disclination [67] と呼ばれる) 構造に関する研究がいくつかあるが、 CrNb_3S_6 などのカイラルらせん磁性体に関しては理論的な研究はまだされていない。カイラルらせん磁性体の準安定状態や、ソリトン数を増減する機構は未だ解明されておらず、興味深い課題である。

1.2 研究の目的・論文の構成

前節で述べたように、カイラルらせん磁性体の研究については、広い温度・磁場領域におけるソリトンの安定性やクロスオーバー現象を含めた物性と物理的描像の確立が課題となっている。また、一次転移の存在については、理論的にも実験的にも見解が分かれており、観測可能性の評価が必要とされている。実験的に一次転移の証拠を捉えるためには、一次転移の際に現れる特徴的な振る舞いを明らかにする必要があるほか、実験的に捉えられている一次転移とは異なる起源で発現するヒステリシスの機構の解明が求められている。これらの問題点を踏まえて、我々は以下の二つを本研究の目的とする。(1) 三次元格子上的カイラルらせん磁性体のモデルを平均場近似を用いて解析し、カイラルらせん磁性体の相図の統一的な理論を構築する。(2) カイラルらせん磁性体の準安定状態を解析し、実験で見られているヒステリシスの起源を明らかにする。

本論文の構成は以下の通りである。

第2章では、カイラルらせん磁性体の理論の基礎的な部分についてまとめた上で、本研究で用いるモデルを説明する。カイラルサインゴルドンモデルで用いられている連続体近似は、らせんの周期が短い系には適用できないが、格子系にすることによって、このような周期の短い系も解析が可能である。本研究は主にらせんの周期の長い CrNb_3S_6 を念頭においているが、周期の短いらせん磁性体への解析にも適用可能であることをここで強調しておく。

第3章において、三次元格子上的カイラルらせん磁性体を数値的な解析・準安定孤立ソリトンの解析・ランダウの自由エネルギーを用いて解析し、相図の全容を多角的な視点から明らかにする。数値的な解析はすべての温度・磁場領域で有効であるため、一様相も含めた広い温度・磁場領域における物理量やソリトンの振る舞いを統一的に解析できる。ここでは特にソリトンの安定性と相転移、およびクロスオーバーに着目し、物性を議論する。また、一次転移の振る舞いに着目し、観測可能性について評価する。

第4章は、実験で観測されている明瞭なヒステリシスと、ソリトン数に関係したカイラルらせん磁性体の準安定状態との関係を明らかにする。らせんの両端のエネルギーバリアを解析的・数値的に評価し、らせんの両端からソリトンを入り出すことを仮定したときの、磁化曲線に現れるヒステリシスを議論する。また、ソリトン数を変化させる過程として、磁壁を含む状態を中間状態として仮定し、磁壁の構造と磁壁が作るエネルギーバリアを評価する。

最後に第5章において、本論文の成果と意義、および今後の展望をまとめる。

第2章 カイラルらせん磁性体の理論と計算手法

この章では、カイラルらせん磁性体の基本的な理論を紹介し、本論文で用いるカイラルらせん磁性体のモデルと手法を解説する。2.1節では、らせん磁性体をカイラリティの有無で分類し、絶対零度におけるカイラルらせん磁性体の磁場中の振る舞いを解析する。2.2節において、三次元に拡張したカイラルらせん磁性体のモデルと、本研究で用いる平均場近似の手法を紹介する。2.3節では、カイラルサインゴルドンモデルで用いられている連続体近似の適用範囲の議論と、カイラルらせん磁性体 CrNb_3S_6 のパラメーターの評価を行う。

2.1 一次元カイラルらせん磁性体

2.1.1 らせん磁性体

らせん磁性にはカイラリティを持つものと、持たないものが存在する。カイラリティを持たないらせん磁性体では、右まきらせんと左まきらせんのエネルギーが縮退している。これを $J_1 - J_2$ 型、もしくは吉森型の対称らせん磁性体と呼ぶ [68]。このらせん磁性体においては、最近接相互作用 J_1 と反強磁性的な次近接相互作用 $J_2 (< 0)$ らの競合により、磁気モーメントがらせん状に配列する。ハミルトニアンは以下のように書かれる：

$$\mathcal{H} = -J_1 \sum_{\ell} \mathbf{S}_{\ell} \cdot \mathbf{S}_{\ell+1} - J_2 \sum_{\ell} \mathbf{S}_{\ell} \cdot \mathbf{S}_{\ell+2}. \quad (2.1.1)$$

ここで、 \mathbf{S}_{ℓ} は ℓ 番目のサイトにおける、大きさ S のハイゼンベルグスピンである。最近接相互作用 J_1 は正 (強磁性的) でも負 (反強磁性) でもどちらでもよい。例えば $J_1 > 0$ の場合を考えてみると、磁気モーメントは J_1 の効果によりすべて同じ方向を向こうとする。しかし次近接相互作用 J_2 は反強磁性的 ($J_2 < 0$) であるため、一つ置きに磁気モーメントは反平行に揃おうとする。これらの交換相互作用の競合により磁気モーメントはらせん秩序を形成する。この場合は磁気モーメントが巻く方向は任意である。

一方、カイラリティを持つらせん磁性体 (カイラルらせん磁性体) は、DM 相互作用によって右巻き・左巻きらせんの縮退が解けたらせん構造を呈する。この相互作用は、はじめジャロシンスキーが現象論的に、磁気モーメントの外積に比例する相互作用が結晶構造の対称性から許されることを示し [2, 36–38]、その後、守谷が分子論的に導いたものである [3]。ハミルトニアンは

$$\mathcal{H} = -J \sum_{\ell} \mathbf{S}_{\ell} \cdot \mathbf{S}_{\ell+1} - \mathbf{D} \cdot \sum_{\ell} \mathbf{S}_{\ell} \times \mathbf{S}_{\ell+1} \quad (2.1.2)$$

と表される。ベクトル \mathbf{D} は DM 相互作用ベクトルで、結晶構造によって方向が決まる。ここで第二項目に着目すると、DM 相互作用ベクトルと隣り合う磁気モーメント $\mathbf{S}_{\ell}, \mathbf{S}_{\ell+1}$ がすべて直交するとき、この項に由来するエネルギーが最も低くなる。つまり第二項だけ見ると、磁気モーメントは常に DM 相互作用ベクトルに対して垂直の方向を向きながら、隣り合う磁気モーメントと 90° の角度を呈する。これと、ハミルトニアン第一項目の交換相互作用との競合により磁気モー

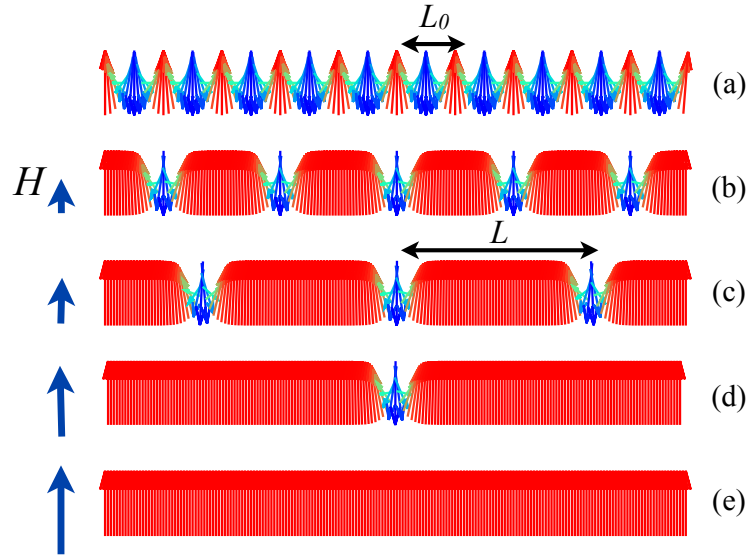


図 2.1: 外部磁場を変化させた際のらせん構造の変化 ([33] を参考に作成)。(a) カイラルらせん磁気構造 (周期 L_0)、(b), (c) カイラルソリトン格子構造 (周期 L)、(d) 孤立ソリトン状態 (e) 強制強磁性状態。

メントは緩やかならせんを形成する。磁気モーメントの巻く方向は DM 相互作用ベクトルの方向で一意に決まり、それとは逆方向に巻こうとするとハミルトニアン第二項目の符号が逆転するため、不安定な構造になる。

これらの対称型らせん磁性体・カイラルらせん磁性体のちがいは、外部磁場をらせんに垂直方向にかけたときに顕著に現れる。対称型らせんでは、らせんの右巻きと左巻きが交互に繰り返される、扇状 (ファン) 構造が形成される一方で、カイラルらせん磁性体では、らせんの巻きが周期的にほどけたカイラルソリトン格子構造が形成される (図 2.1) [38, 40]。

2.1.2 一次元カイラルらせん鎖の解析¹

カイラルらせん磁性体は、連続体近似を課すことによって、らせんに垂直に磁場をかけたときに生じるカイラルソリトン格子構造も含めて、楕円関数を用いた解析的な記述が可能である。このような磁気モーメントの非線形構造も厳密に表せるというのは非常に珍しいケースである。

絶対零度において、一次元カイラルらせん磁性体を考える。らせん軸を z 軸に取り、 $z = \ell$ におけるサイトの磁気モーメントと $\ell + 1$ におけるサイトの磁気モーメントがなす角を ϕ とおくと

$$\mathbf{S}_\ell \cdot \mathbf{S}_{\ell+1} = S^2 \cos \phi, \quad \mathbf{S}_\ell \times \mathbf{S}_{\ell+1} = S^2 \sin \phi \hat{z} \quad (2.1.3)$$

となるから、ハミルトニアン (2.1.2) のはじめの 2 項を

$$-S^2(J \cos \phi + D \sin \phi) = -S^2 \sqrt{J^2 + D^2} \cos(\phi - \alpha) \quad (2.1.4)$$

$$\alpha = \arctan(D/J) \quad (2.1.5)$$

¹この節は岸根順一郎氏より頂いた資料 [69] を参考にしている。詳しい計算は Appendix A に載せる。

とまとめられる。ここから、ゼロ磁場におけるらせんの周期 L_0 が

$$L_0 = \frac{2\pi}{\alpha} = \frac{2\pi}{\arctan(D/J)} a_0 \quad (2.1.6)$$

と表せる。 a_0 は格子定数である。ここでカイラル磁性体 CrNb_3S_6 では格子定数が $a_0 = 1.21\text{nm}$ 、ゼロ磁場におけるらせんの周期が $L_0 = 48\text{nm}$ と測定されているので [30, 31, 33]、これらから DM 相互作用の大きさは $D/J \simeq 0.16$ となる。また、 CrNb_3S_6 では格子間隔に比べてらせんの周期が $L_0 \simeq 40a_0$ とかなり長く、らせんの巻きは緩やかである。ここから、離散的なスピンモデルを連続的なモデルへと連続体近似することが正当化される。以下では a_0 で規格化を行う。

磁場中のカイラルらせん磁性体を考える。外部磁場を x 軸方向にかけることとし、 ℓ 番目のサイトの磁気モーメントが x 軸となす角を ϕ_ℓ とおくと、ハミルトニアンは

$$\mathcal{H} = -JS^2 \sum_{\ell} \cos(\phi_\ell - \phi_{\ell+1}) - DS^2 \sum_{\ell} \sin(\phi_\ell - \phi_{\ell+1}) - HS \sum_{\ell} \cos \phi_\ell \quad (2.1.7)$$

と書ける。ここで連続体近似を課すと、カイラルサインゴルドンモデルのハミルトニアン

$$\mathcal{H} = JS^2 \int \left[\frac{1}{2} \left(\frac{d\phi}{dz} \right)^2 - Q_0 \frac{d\phi}{dz} - m^2 \cos \phi \right] dz \quad (2.1.8)$$

と、運動方程式

$$\frac{d^2\phi}{dz^2} = -m^2 \sin \phi \quad (2.1.9)$$

を得る。ここで、

$$\alpha = \arctan \left(\frac{D}{J} \right) \simeq \frac{D}{J} \equiv Q_0, \quad (2.1.10)$$

$$m^2 \equiv \frac{H}{JS} \quad (2.1.11)$$

とおいた。運動方程式を解くと、sn 関数と定数 κ を用いて $\sin(\phi/2) = \text{sn}(mz/\kappa)$ を得る。この解をハミルトニアンに戻し、 κ の関数として変分をとると、

$$\frac{\kappa}{E(\kappa)} = \frac{4}{\pi Q_0} \sqrt{\frac{H}{JS}} \quad (2.1.12)$$

を得る。ここで、 $E(\kappa)$ は κ を母数とする第二種楕円積分である。外部磁場 H を与えれば κ が決まり、カイラルソリトン格子構造が決定する。また、磁場中のらせんの周期 L (ソリトン間距離) は

$$L = \frac{8K(\kappa)E(\kappa)}{\pi Q_0} \quad (2.1.13)$$

と求められる。ここで $K(\kappa)$ は κ を母数とする第一種楕円積分である。

楕円関数と、らせんの周期の κ 依存性を、図 2.2 に示す。まず、ゼロ磁場では $\kappa = 0$ であるので、楕円積分は $K(0) = \pi/2$, $E(0) = \pi/2$ となり、周期は

$$L_0 = \frac{2\pi}{Q_0} \quad (2.1.14)$$

となる。これは (2.1.6) と一致する結果である。一方 $\kappa = 1$ のときを考えると $K(1) \rightarrow \infty$, $E(1) = 1$ より

$$L(\kappa = 1) \rightarrow \infty \quad (2.1.15)$$

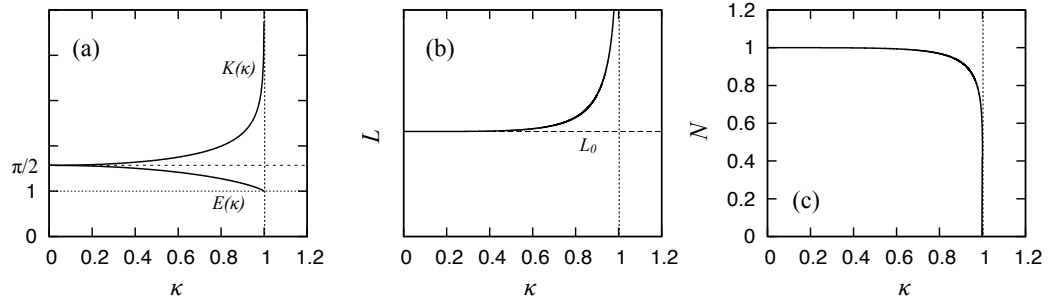


図 2.2: (a) 第一種および第二種楕円関数の母数 $\kappa (\propto \sqrt{H/H_c})$ の依存性。(b) らせんの周期の磁場依存性。臨界磁場 $\kappa = 1$ で発散し、 $\kappa > 1$ では強制強磁性状態である。(c) 単位長さあたりのソリトン数の κ 依存性。(これらの図は [69] を参考に作成。)

となり、周期が無限大、つまり磁気モーメントが磁場方向にすべて揃った強制強磁性状態になる。 $\kappa = 1$ となるときの磁場を H_c とおくと

$$\begin{aligned} \frac{\kappa}{E} = 1 &= \frac{4}{\pi Q_0} \sqrt{\frac{H_c}{JS}} \\ \Rightarrow H_c &= \left(\frac{\pi}{4}\right)^2 JS \left(\frac{D}{J}\right)^2 \end{aligned} \quad (2.1.16)$$

と表される。この特徴的な磁場の値 H_c を臨界磁場といい、このとき一様相と、カイラルソリトン相との相転移が起こる。次節でも言及するが、 H_c は温度に依存する。また単位長さあたりのソリトン数 N は、

$$N = \frac{4}{\pi^2 K(\kappa) E(\kappa)} \quad (2.1.17)$$

と表せる。これは臨界磁場よりも小さな磁場領域では値を持ち、 H_c よりも大きな磁場では 0 となるため (図 2.2(c))、 N を秩序パラメーターにとることができる。

2.2 有限温度カイラルらせん磁性体のモデルと数値計算手法

カイラルサインゴルドンモデルは、二つの問題点がある。一つは系を一次元まで縮約したモデルであるということ、もう一つは連続体近似を用いている点である。一次元モデルは、絶対零度においてのみ有効であり、有限温度を取り扱うためには、三次元に拡張する必要がある。また、らせんの周期が短い系には、連続体近似が適用できない。これらを解決するためには、三次元格子上的カイラルらせん磁性体のモデルを考える必要がある。この節では、三次元カイラルらせん磁性体のモデルを定義し、その計算手法を示す。

2.2.1 三次元格子上的カイラルらせん磁性体のハミルトニアン

我々は、三次元格子上的カイラルらせん磁性体のハミルトニアンとして、以下のものを考える：

$$\begin{aligned} \mathcal{H} = & -J^\perp \sum_i \mathbf{S}_i \cdot (\mathbf{S}_{i+\hat{x}} + \mathbf{S}_{i+\hat{y}}) - J^\parallel \sum_i \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_{i+\hat{z}} \\ & - D \sum_i (\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_{i+\hat{z}}) \cdot \hat{z} - H \sum_i \mathbf{S}_i \cdot \hat{x}. \end{aligned} \quad (2.2.1)$$

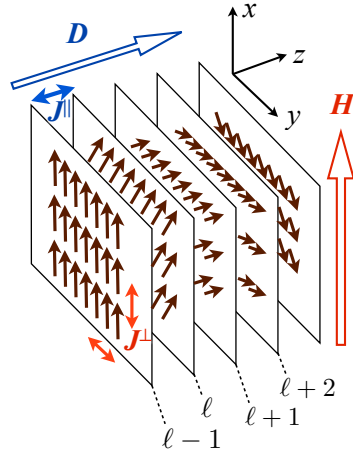


図 2.3: 三次元カイラルらせん磁性体のスピンモデル。

図 2.3 に、このハミルトニアンで表される系の模式図を載せる。格子上的各サイトは、整数 i_x, i_y, ℓ を用いて $\mathbf{i} = i_x \hat{\mathbf{x}} + i_y \hat{\mathbf{y}} + \ell \hat{\mathbf{z}}$ により指定する。 $\hat{\mathbf{x}}, \hat{\mathbf{y}}, \hat{\mathbf{z}}$ はそれぞれ x, y, z 方向の単位ベクトルである。 xy 方向の異方性はなく、この平面が層 (layer) 状に z 軸方向に積み重なるモデルを考える。層 (二次元面) のラベルを ℓ とおいている。 $\mathbf{S}_i = (S_i^x, S_i^y, S_i^z)$ は、 i 番目のサイトにおける長さ S の古典ハイゼンベルグスピンを表す。DM 相互作用ベクトルを \mathbf{D} と置き、 z 軸方向にかかるものとする。 $J^\perp > 0, J^\parallel > 0$ はそれぞれ、面内、面間に働く交換相互作用で、強磁性的なもの考える。 \perp, \parallel の記号は DM 相互作用ベクトルに対して垂直、平行を意味する。

2.2.2 平均場近似の定式化

我々は、カイラルらせん磁性体の有限温度の性質を、平均場近似の手法を用いて解析する。式 (2.2.1) に平均場近似を課すと、以下の 1 スピンハミルトニアンに還元することができる：

$$\mathcal{H}_{\ell, \mathbf{i}_\perp}^{\text{MF}} = -\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}} \cdot \mathbf{S}_{\ell, \mathbf{i}_\perp} + C_\ell. \quad (2.2.2)$$

ここで、層内のサイトのラベルを $\mathbf{i} = \mathbf{i}_\perp + \ell \hat{\mathbf{z}}, \mathbf{i}_\perp = i_x \hat{\mathbf{x}} + i_y \hat{\mathbf{y}}$ とおいた。 $\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}}$ は、 i 番目の磁気モーメントが感じる有効磁場であり、以下の様に表せる：

$$\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}} = J^\parallel (\mathbf{M}_{\ell+1} + \mathbf{M}_{\ell-1}) + 4J^\perp \mathbf{M}_\ell + D(\mathbf{M}_{\ell+1} - \mathbf{M}_{\ell-1}) \times \hat{\mathbf{z}} + H \hat{\mathbf{x}}. \quad (2.2.3)$$

また、 C_ℓ は定数で、

$$C_\ell = \frac{\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}} - H \hat{\mathbf{x}}}{2} \cdot \mathbf{M}_\ell \quad (2.2.4)$$

と定義される。 ℓ 番目の層の磁気モーメントの熱平均を $\mathbf{M}_\ell = \langle \mathbf{S}_{\ell, \mathbf{i}_\perp} \rangle$ と表し、以下で定義する：

$$\frac{\mathbf{M}_\ell}{S} = \left[\coth(\beta S |\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}}|) - \frac{1}{\beta S |\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}}|} \right] \frac{\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}}}{|\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}}|}. \quad (2.2.5)$$

ただし、 $\beta = 1/T, k_B = 1$ とする。ここで、 $\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}}$ と \mathbf{M}_ℓ は \mathbf{i}_\perp に依存しない。本論文では、 \mathbf{M}_ℓ のことを単に「磁気モーメント」と呼ぶことがある。

平均場近似の範囲では、自由エネルギーは以下のように表せる：

$$\frac{F}{N} = -\frac{1}{\beta N_z} \sum_{\ell} \log \left(\frac{\sinh(\beta S |\mathbf{H}_{\ell}^{\text{eff}}|)}{\beta S |\mathbf{H}_{\ell}^{\text{eff}}|} \right) + \frac{1}{N_z} \sum_{\ell} C_{\ell}. \quad (2.2.6)$$

ここで、 x , y , z 方向のサイト数をそれぞれ N_x , N_y , N_z とおき、系全体のシステムサイズを $N = N_x N_y N_z$ とおいた。また、面内のサイト数を $N_{2d} (= N_x N_y)$ と定義する。以上の平均場方程式・自由エネルギーの導出の詳細は Appendix B に示す。

この系は、ゼロ磁場でらせん構造を呈する。このとき、有効磁場 $\mathbf{H}_{\ell}^{\text{eff}}$ はらせん磁場となり、

$$\mathbf{H}_{\ell}^{\text{eff}} = H^{\text{eff}} (\cos(\theta\ell + \Theta), \sin(\theta\ell + \Theta), 0), \quad (2.2.7)$$

$$H^{\text{eff}} = 2M_h (J^{\parallel} \cos \theta + D \sin \theta) \quad (2.2.8)$$

と表すことができる。ここで θ は最近接の面間の磁気モーメントの角度を表し、 Θ は端の状態を考慮した因子である。また、 M_h は系全体で磁気モーメントの熱平均をとったもので、らせん構造のときにはサイトに依らない。ある M_h が与えられたとき、 H^{eff} が最大になり、角度が $\theta = \alpha$ (ただし $\alpha \equiv \arctan(D/J^{\parallel})$) となることで転移温度が最大になることが期待される。

ここで、微小磁場

$$\mathbf{H}_{\alpha} = H_{\alpha} (\cos(\alpha\ell), \sin(\alpha\ell), 0) \quad (2.2.9)$$

をかけることを考える。このとき、 $\Theta = 0$ となり、二次元ハイゼンベルグモデルの帯磁率 χ^{2d} を用いて、 M_h は

$$M_h = \chi^{2d} (H_{\alpha} + H^{\text{eff}}) \quad (2.2.10)$$

となる。ゼロ磁場における二次元ハイゼンベルグモデルの帯磁率は、平均場近似で $\chi^{2d} = S^2 / (3T - 4J^{\perp} S^2)$ である。式 (2.2.8) において $\theta = \alpha$ としたものを、式 (2.2.10) に代入し、三次元系のらせん磁性の帯磁率 $\chi_h^{3d} \equiv \partial M_h / \partial H_{\alpha}$ を求めると、

$$\chi_h^{3d} = \frac{\chi^{2d}}{1 - 2\chi^{2d} \sqrt{J^{\parallel 2} + D^2}} \quad (2.2.11)$$

が得られる。ゼロ磁場での転移温度 $T_c^{H=0}$ は、 $\chi_h^{3d} \rightarrow \infty$ の条件から得られる。ここから、我々は三次元カイラルらせん磁性体のゼロ磁場での転移温度を以下のように得る：

$$T_c^{H=0} = \frac{4J^{\perp} + 2\sqrt{J^{\parallel 2} + D^2}}{3} S^2. \quad (2.2.12)$$

この章では、ゼロ磁場における転移温度を評価したが、カイラルらせん磁性体の転移温度は磁場に依存する。本論文では、転移温度を T_c^H と表記し、ゼロ磁場の転移温度は特に $T_c^{H=0}$ と表記する。また、同様に臨界磁場 H_c も温度に依存するため、本論文では H_c^T と表記し、特に絶対零度における臨界磁場を $H_c^{T=0}$ と表記する。

2.2.3 数値計算のアルゴリズム

我々は、各層 (ℓ) において平均場方程式 (式 (2.2.3), (2.2.4), (2.2.5)) を自己無撞着に解くことにより、任意の温度での物理量を計算する。効率よく計算するために、多くの磁気配置を用意し、

それぞれの磁気配置に対して平均場方程式を解くことにする²。本研究では、特に言及しないかぎり、周期境界条件を用い、初期磁気配置として以下のものを用いる：

$$\mathbf{M}_\ell = S(\cos k\ell, \sin k\ell, 0), \quad k = 2\pi w/N_z. \quad (2.2.13)$$

ここで、 $w = 0, 1, 2, \dots, [w_0 + 1]$, $w_0 = N_z\alpha/(2\pi)$ とする。記号 $[x]$ は x に等しいかそれ以下の最大整数をとることを意味する。 w_0 は、ゼロ磁場でのらせんの巻き数である。各磁気配置に対し、(2.2.3) 式に基づいて $\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}}$ を計算し、得られた $\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}}$ を (2.2.5) 式に代入して \mathbf{M}_ℓ を更新する。すべての ℓ について \mathbf{M}_ℓ が更新された状態を 1 iteration と呼ぶ。100,000 iteration の後、

$$\max_{\ell, \mu=x,y,z} \left\{ \left| \frac{M_\ell^\mu}{S} - \left[\coth(\beta S |\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}}|) - \frac{1}{\beta S |\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}}|} \right] \frac{(H_\ell^{\text{eff}})^\mu}{|\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}}|} \right| \right\} \quad (2.2.14)$$

を計算すると、いずれの磁気配置についてもこの値が 10^{-14} 以下になることが確認できる。また、1 iteration ごとの自由エネルギーの変化が 10^{-12} 以下となる。これを、十分に緩和したと見なし、計算を終了する。各初期磁気配置について、終状態の磁気配置が得られる。得られた個々の磁気配置について自由エネルギーを計算し、最小の自由エネルギーをとる状態を、最安定解として採用する。

2.3 極限の振る舞いと CrNb₃S₆ のパラメーター評価³

この節では、絶対零度における磁場中カイラルらせん磁性体の振る舞い、およびゼロ磁場における有限温度の振る舞いを解析する。まず、絶対零度における臨界磁場 $H_c^{T=0}$ を評価し、格子系にしたことによってカイラルサインゴルドンモデルとどのような違いが現れるかを議論する (2.3.1 節)。古典スピン系ならば絶対零度では熱ゆらぎがないため、フラストレーションなどが起こらない系では平均場近似は厳密な解を与えることが期待される。一方で、有限温度の系の解析にはモンテカルロシミュレーションが有効である。ただし、磁場中のカイラルらせん磁性体には多数の準安定状態が存在するため、モンテカルロ計算が困難である。2.3.2 節では、ゼロ磁場の系のモンテカルロ計算を行い、平均場近似によって失われる定量性について議論する。また、2.3.3 節では、得られた結果を用いてカイラルらせん磁性体 CrNb₃S₆ のパラメーターの評価を行う。

2.3.1 絶対零度におけるカイラルサインゴルドンモデルとの比較と臨界磁場の DM 相互作用依存性

ここでは、絶対零度における臨界磁場 $H_c^{T=0}$ について議論する。絶対零度における、カイラルサインゴルドンモデルと平均場近似との違いは、系を連続体として近似するか、格子系で扱うかという点である。カイラルサインゴルドンモデルは DM 相互作用が十分小さく、離散的な磁気モーメントを連続的に取り扱うことができるときに有効である。この連続体近似がどのくらいの領域まで有効であるのかを調べる。

カイラルサインゴルドンモデルの解析によると、絶対零度における臨界磁場は、厳密に

$$H_c^{T=0}/(J^\parallel S) = \left[\frac{\pi}{4} \arctan(D/J^\parallel) \right]^2 \quad (2.3.1)$$

²第4章で詳しく述べるが、有限サイズの磁場中カイラルらせん磁性体では、ソリトン数に応じた多数の準安定状態が存在し、適切な初期状態を用意しなければエネルギー最安定な状態にたどり着くことができない。準安定状態はソリトン数に対応して存在するので、初期状態としては与えたシステムサイズの系に許されるソリトン数 (らせんの巻き数) をすべて用意しておくことが必要となる。

³この節は参考文献 [46] の成果の一部である。

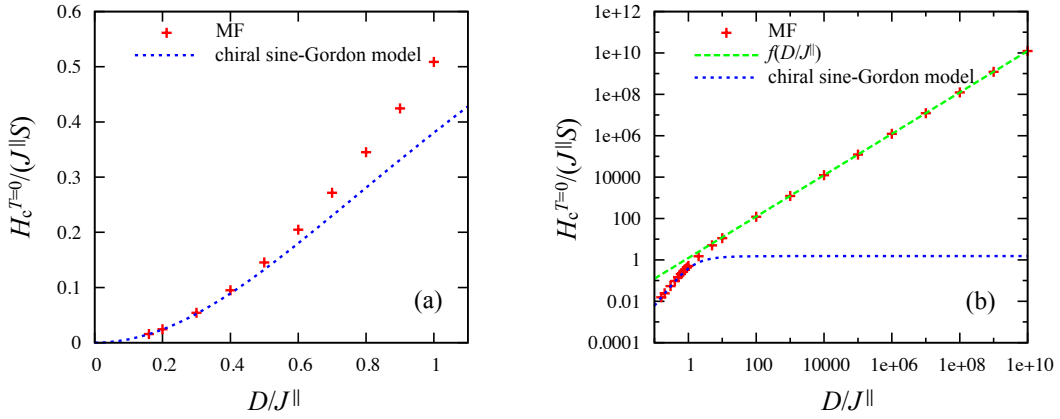


図 2.4: 絶対零度における、臨界磁場の DM 相互作用依存性。(a) DM 相互作用が小さいときの図。 $D/J||$ が 0.4 より小さいところでは、カイラルサインゴルドンモデルと平均場近似との誤差は 0.1% 以内にとどまる。(b) DM 相互作用が大きいときの図。カイラルサインゴルドンモデルによると一定値に収束するが、平均場近似によると、臨界磁場は DM 相互作用に対して線形に増大する。

と求められる [70]。図 2.4 は、平均場近似で求めた絶対零度における臨界磁場と、カイラルサインゴルドンモデルの解析とを比較したものである。ここで、 $H_c^{T=0}$ に J^\perp 依存性はなく、ここでは $J^\perp/J|| = 1$ に設定した。図 2.4(a) は $D/J|| < 1$ の領域を描いている。赤い十字が平均場の結果、青い点線がカイラルサインゴルドンモデル (式 (2.3.1)) の結果である。どちらの解析でも、 $H_c^{T=0}$ はほぼ DM 相互作用の二乗に比例して増大する。 $D/J||$ が 0.4 以下であれば、カイラルサインゴルドンモデルと平均場近似との誤差は 0.1% 以内に収まる。

図 2.4(b) は、DM 相互作用が非常に大きい領域までプロットしたものである。カイラルサインゴルドンモデルによると、臨界磁場は一定値に収束してしまうが、平均場近似によると、 $H_c^{T=0}$ は $D/J||$ に対して線形に増大する。これをフィッティング関数

$$f(x) = ax \quad (2.3.2)$$

で、 $1 < x = D/J||$ においてフィットしたのが緑の鎖線である。このときのフィッティングパラメーター a は、 $D/J|| \rightarrow \infty$ 、つまり $J|| = 0$ における臨界磁場 $H_c^{T=0}(J|| = 0)/(DS)$ を意味しており、その値は数値的に $a = H_c^{T=0}(J|| = 0)/(DS) = 1.23687$ と得られる⁴。

2.3.2 ゼロ磁場でのモンテカルロの結果と転移温度の J^\perp 依存性

次に、ゼロ磁場での転移温度 $T_c^{H=0}$ について議論する。平均場近似は、熱ゆらぎの効果を無視した結果、定量性が失われる。一方、モンテカルロ法による解析は、熱ゆらぎの効果を含めて系の物性を評価することができる。ここでは、平均場近似による解析と、モンテカルロ法を用いた解析とを比較し、熱ゆらぎの効果を調べる。

まず、用いたモンテカルロ法の詳細を述べる。我々は熱浴法 [71, 72] と、温度レプリカを用いた交換モンテカルロ法 [73] を組み合わせた、古典モンテカルロシミュレーションを行った。温度レプリカは、 $0.25T_c^{H=0}$ から $2T_c^{H=0}$ の範囲で 128 レプリカとることにした。ここで $T_c^{H=0}$ はモンテカルロ法で求めた転移温度である。初期配置はランダムとし、パラメーターに依存して 10^5 回か

⁴最終桁に誤差を含む

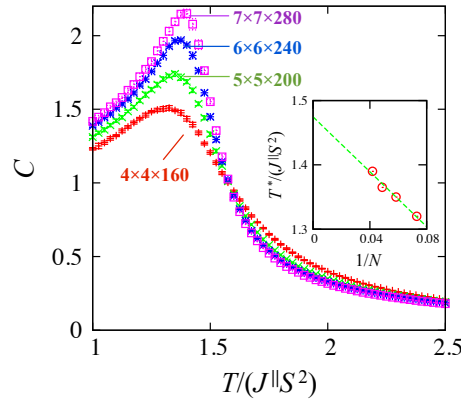


図 2.5: モンテカルロ法によって求めた、ゼロ磁場における比熱の温度依存性をいくつかのシステムサイズについて調べた図。パラメーターは $D/J^{\parallel} = 0.16$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 1$ とした。挿入図は、比熱のピーク位置 T^* の、システムサイズ依存性。比熱のピーク位置は、システムサイズの逆数に比例する。フィッティング関数の y 切片から、熱力学極限における転移温度を見積もる。

ら 10^8 回の緩和を行い、その後、同じ回数だけモンテカルロサンプリングを行った。この操作を、異なる初期配置 24 個に対して行い、それらの統計平均や統計誤差を評価した。また、計算では周期境界条件を課した。

このモンテカルロ計算は、ゼロ磁場に対しては有効であるが、磁場をかけると緩和が著しく遅くなり、計算が困難となる。これは、磁場中の系に、ソリトン数に特徴付けられる多数の準安定状態が存在するためである。ゆえにここでは、ゼロ磁場の系に限りモンテカルロ法を適用した解析を行う。磁場中の系のシミュレーションの困難を解決するために、近年、イベントチェーン・モンテカルロ法 (event-chain Monte Carlo algorithm) を用いた磁場中カイラルらせん磁性体の研究が報告されている [50, 54]。

我々は、転移温度 $T_c^{H=0}$ を比熱の温度依存性から評価することにした。図 2.5 は、モンテカルロ法によって求めた、いくつかのシステムサイズ $((N_x N_y N_z) = (4, 4, 160), (5, 5, 200), (6, 6, 240), (7, 7, 280))$ についての比熱の温度依存性のグラフである。比熱は転移点で発散をするが、有限サイズではピークを形成する。システムサイズを大きくするほど、比熱のピークが高くなっていくのが分かる。ピーク位置 T^* をたどると、徐々に高温側にシフトしていく様子が見られる。図 2.5 の挿入図は、システムサイズの逆数 $1/N = 1/(N_x N_y N_z)$ の、 T^* 依存性をとったものである。これを外挿することで、 $N \rightarrow \infty$ における転移温度を評価した。例えば、この図から、我々は $D/J^{\parallel} = 0.16$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 1$ に対して、転移温度 $T_c^{H=0}/(J^{\parallel} S^2) = 1.47$ を得る。これは $J^{\parallel} = J^{\perp} = 1 \equiv J$ の三次元ハイゼンベルグモデルの転移温度 $T_c^{H=0, \text{Heisenberg}}/(J S^2) = 1.44$ [74] に比べて少し高いくらいである。これは DM 相互作用の影響で、転移温度が少し高くなるためである。

図 2.6 は、転移温度の J^{\perp}/J^{\parallel} 依存性を示したもので、モンテカルロ法で求めた結果と平均場近似の結果 (式 (2.2.12)) との比較している。 J^{\perp}/J^{\parallel} が大きくなるほど、熱ゆらぎの効果が顕著となるため、平均場近似の結果はモンテカルロの結果と離れていき、定量性が悪くなる。

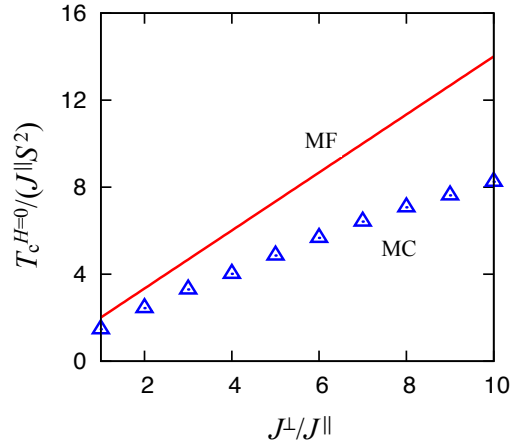


図 2.6: 平均場近似の手法 (MF) およびモンテカルロ法 (MC) で評価した、転移温度の J^{\perp}/J^{\parallel} 依存性。ここで、 $D/J^{\parallel} = 0.16$ とした。

2.3.3 CrNb_3S_6 のパラメーター評価

この節では、カイラルらせん磁性体の一つである CrNb_3S_6 のパラメーターを評価する。実験的なデータとして、スピンの長さ $S = 3/2$, 格子定数 $a_0 = 1.2$ nm, ゼロ磁場でのらせん周期 $L = 48$ nm, ゼロ磁場での転移温度 $T_c^{H=0} = 127$ K, および絶対零度における臨界磁場 $H_c^{T=0} \simeq 0.14$ T (これは温度に直すと、 g 因子を 2 として $= 0.19$ K である) を用い [31]、理論的なデータと比較することで CrNb_3S_6 のパラメーター $D, J^{\perp}, J^{\parallel}$ を見積もる。

まず、カイラルサインゴルドンモデルによると、らせんの周期は $L/a_0 = 2\pi/\arctan(D/J^{\parallel})$ と表せる [69]。これに実験値を入れることで、 $D/J^{\parallel} = 0.16$ を得る。

次に、 $D/J^{\parallel} = 0.16$ のパラメーターでの絶対零度における臨界磁場の値から、 D, J^{\parallel} それぞれの値を見積もる。平均場近似の計算から、臨界磁場は $H_c^{T=0}/(J^{\parallel}S) = 0.0157$ である。この値は J^{\perp} によらない。また、絶対零度の計算であるので、平均場近似でも定量的に正しい。これに実験値を入れることで、

$$J^{\parallel}S^2 = 18 \text{ K} \quad (2.3.3)$$

を得る。同時に DM 相互作用の大きさも見積もることができ、

$$DS^2 = 2.9 \text{ K} \quad (2.3.4)$$

を得る。

最後に、ゼロ磁場の転移温度の結果から、 J^{\perp} を見積もる。転移温度は平均場近似では定量性が失われていて、正確な見積もりができないので、モンテカルロの結果を用いる。図 2.6 において、縦軸の $T_c^{H=0}/(J^{\parallel}S^2)$ に実験値 $T_c^{H=0} = 127$ K および、先ほど求めた $J^{\parallel}S^2 = 18$ K の値を入れ、そのときの J^{\perp}/J^{\parallel} の値をたどると、 $J^{\perp}/J^{\parallel} = 8$ を得る。ここから、

$$J^{\perp}S^2 = 1.4 \times 10^2 \text{ K} \quad (2.3.5)$$

が得られる。

以上の結果は、カイラルらせん磁性体 CrNb_3S_6 を、立方格子と仮定したモデルを用いた理論計算と、実験値との比較で求めたものである。実際には CrNb_3S_6 は六方晶であり、厳密な値とは異

なることに注意されたい。しかし、厳密ではないものの、この結果から、らせんに垂直方向の交換相互作用 J^\perp が、他のパラメーター D, J^\parallel に対して非常に大きい、ということが言える。 CrNb_3S_6 の転移温度が他のカイラル磁性体 (MnSi など) と比べて比較的高いのは、 J^\perp によるものである。

また、 $J^\perp \gg J^\parallel$ の結果は、 CrNb_3S_6 のスピンモデルとして、図 2.3 に示したような、強磁性的に強く相互作用した二次元平面が、らせん軸方向に弱く相互作用したモデルに表すことができることを示している。この結果は、二次元平面を一つの磁気モーメントと見なし、系を一次元まで縮約したカイラルサインゴルドンモデルの正当性を保証する。

このようなモデルでは、三次元方向すべてに平均場近似を課すより、二次元平面をモンテカルロ法で解き、一次元方向のみ平均場で取り扱うという手法が、定量性を改善する [46, 75]。また、二次元ハイゼンベルグモデルのモンテカルロシミュレーションは、準安定状態の問題などを生じることがないので、磁場中カイラルらせん磁性体よりもずっと簡単に解くことができる。このような定量性と計算コストを両立した数値計算手法については、Appendix C に示す。

第3章 カイラルらせん磁性体の相図

この章ではカイラルらせん磁性体の相図に焦点を当てる。平均場近似による数値解析は、一様相のクロスオーバーを含めた広い温度・磁場領域の物性を、統一的に議論することができる。一方で、Schaub, Mukamel [45] が行ったような孤立ソリトンの解析や GL 理論を用いた解析を格子系のモデルに拡張して改めて評価し、多角的にカイラルらせん磁性体の有限温度の現象を理解する。

まず 3.1 節において、平均場解析によって得られた相図の全体像を示し、それ以降の節で相図の詳細を述べる。3.2 節では、相転移の種類の違いがどのように物理量に現れるのかを示す。3.3 節では相転移の次数が入れ替わる臨界点を、磁場や自由エネルギーの振る舞いから評価する。同時にランダウ理論を用いて三重臨界点を解析的に評価し、数値結果と比較する。また、一次転移の領域に着目し、エネルギーバリアの評価と一次転移の観測可能性を議論する。3.4 節では、孤立ソリトンの振る舞いを解析し、相転移の次数との関係を示す。3.5 節では、孤立ソリトンの存在領域を示し、低磁場の相境界近傍において生じる磁気構造 (カイラルファン構造) について解説する。最後に、3.6 節で本章のまとめを行う。

3.1 相図

この節では、カイラルらせん磁性体の相図の全体を示し、相転移の次数と各種のクロスオーバーラインを説明する。図 3.1 はカイラルらせん磁性体の $H-T$ 相図である。赤○、赤●、青□が相境界を表している。これらよりも低温・低磁場側はカイラルらせん構造やカイラルソリトン格子構造が実現される秩序相であり、高温・高磁場側は一様相である。相境界は磁化や比熱の振る舞いに現れる特異な点によって評価している (3.2 節)。

赤○は核生成型 (nucleation type) の二次転移、赤●は一次転移、青□は不安定型 (instability type) の二次転移である。図の中の M, T 点はそれぞれ、これらの相転移の種類が入れ替わる多重臨界点 (multicritical point) および 三重臨界点 (tricritical point) を表している。これらの用語は de Gennes の著書 [43] および Schaub, Mukamel らの論文 [45] から引用している。相転移の次数は磁化や自由エネルギーの振る舞いを調べることによって決定している。詳しくは 3.3 節において述べる。

これらの相転移の次数は、孤立ソリトンの振る舞いとも関係する。我々は、系の中にソリトンが一つだけ存在する状態 (図 2.1(d) の状態) を考え、このソリトンの実空間における漸近形の振る舞いを調べた。紫の実線は、ソリトン間相互作用が斥力となる AS (attractive soliton) 領域と、ソリトン間相互作用が引力となる RS (repulsive soliton) 領域との間のクロスオーバーを示す。相境界とこのクロスオーバーラインが交差する点が多重臨界点と一致する。また、孤立ソリトンの大きさが無限大に発散し、系全体に一様にらせんが形成され、孤立ソリトンが存在しなくなる領域が存在する。これを NIS (no isolated soliton) 領域とおき、これと AS 領域との間のクロスオーバーラインを茶色の破線で示す。

また、孤立ソリトン解は、黒▲で示した h_0 ラインより高温・高磁場側で不安定となる (黒△は過大に評価された h_0 ライン)。孤立ソリトンの振る舞いと、それらが安定して存在する領域の評

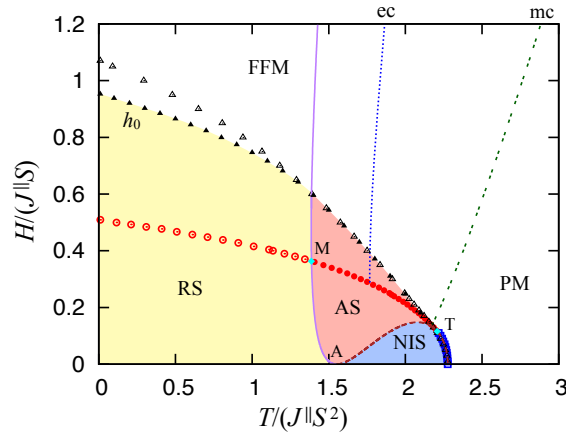


図 3.1: カイラルらせん磁性体の相図。用いたパラメーターは $D/J_{\parallel} = 1$, $J^{\perp}/J_{\parallel} = 1$ 。赤○は核生成型 (nucleation type) の二次転移、赤●は一次転移、青□は不安定型 (instability type) の二次転移。ポイント T は、三重臨界点 (tri-critical point), ポイント M は多重臨界点 (multicritical point) を示す。一様相は常磁性相 (Paramagnetic phase: PM) と強制強磁性相 (forced ferromagnetic phase: FFM) に大きく分けることができる。青い点線は比熱の温度依存性のピーク位置から求めた、エントロピークロスオーバーライン (ec)、緑の二点線は帯磁率の温度依存性のピーク位置から求めた、磁気クロスオーバーライン (mc) である。紫の実線は、漸近形の解析によってもとめたクロスオーバーラインで、RS は斥力の孤立ソリトン (repulsive soliton) が存在する領域, AS は引力のソリトン (attractive chiral soliton) が存在する領域である。茶色の破線は AS 領域のソリトンの大きさが無限大になる点をプロットしたもので、NIS (no isolated soliton) は孤立ソリトンが存在しないことを表す。黒▲は、平均場で求めた孤立ソリトンの準安定限界 (h_0 ライン)。黒△は過大に評価されたもの (3.5 節を参照)。

価 (h_0 ラインの評価) については、それぞれ 3.4 節、3.5 節を参照されたい。

3.1.1 相図のパラメーター依存性

図 3.1 では、パラメーターとして $D/J_{\parallel} = 1$, $J^{\perp}/J_{\parallel} = 1$ を用いているが、相図はパラメーターを変えると、定性的な形を変えずに転移温度や臨界磁場が変化する。図 3.2 に、いくつかのパラメーターでとった相図を示す。転移温度 T_c^H や h_0 ラインはどちらも J^{\perp}/J_{\parallel} と D/J_{\parallel} の両方に依存するが、絶対零度における臨界磁場 $H_c^{T=0}$ や h_0 ラインの切片は J^{\perp}/J_{\parallel} に依存しない。図 3.3 は、 CrNb_3S_6 のパラメーター ($D/J_{\parallel} = 0.16$, $J^{\perp}/J_{\parallel} = 8$) を用いた相図である。表 3.1 に、 $D/J_{\parallel} = 1$, $J^{\perp}/J_{\parallel} = 1$ および $D/J_{\parallel} = 0.16$, $J^{\perp}/J_{\parallel} = 8$ について、ゼロ磁場中の転移温度、絶対零度における臨界磁場、三重臨界点、多重臨界点の値をまとめる⁵。

3.1.2 一様相におけるクロスオーバーライン

次に一様相におけるクロスオーバーラインを評価する。ハイゼンベルグモデルなどでも使用される用語として、高温低磁場側を常磁性相、低温高磁場側を強制強磁性相と呼ぶことにすると、これらの相は相転移はしないが、クロスオーバーが起きる。クロスオーバーラインの評価の仕方は多々あるが、今回は比熱と帯磁率に着目した。

⁵誤差は、特に明記しない場合、最終桁に含まれる。例えば $H_c^{T=0}/(J_{\parallel}S) = 0.50884$ と表記した場合、 $0.508835 \leq H_c^{T=0}/(J_{\parallel}S) < 0.508845$ を意味する。解析的な表式に代入して求めた値 ($T_c^{H=0}$ など) は、示した桁数の一つ下の桁で四捨五入を行っている。

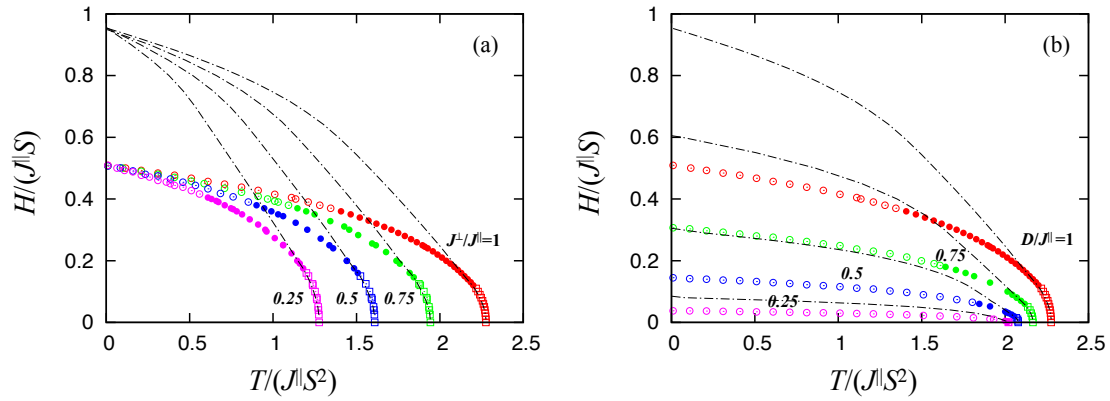


図 3.2: (a) DM 相互作用を $D/J^{\parallel} = 1$ に固定し、いくつかの J^{\perp}/J^{\parallel} に対して描いた相図。(b) $J^{\perp}/J^{\parallel} = 1$ に固定し、いくつかの D/J^{\parallel} に対して描いた相図。○は核生成型の二次転移、●は一次転移、□は不安定型の二次転移。それぞれの相境界の、ゼロ磁場の転移点から延びる一点鎖線は、それぞれのパラメーターにおける h_0 ライン。

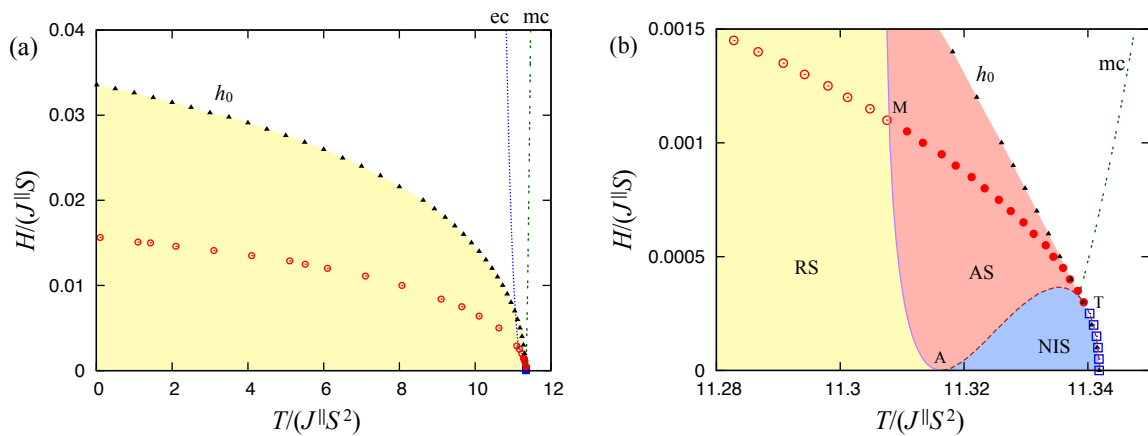


図 3.3: (a) CrNb_3S_6 のパラメーター ($D/J^{\parallel} = 0.16$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 8$) の相図。(b) 低磁場の転移点近傍の拡大図。図中の記号は図 3.1 と同じものである。

表 3.1: パラメーターと臨界点。\$D, J^\perp\$ は \$J^\parallel\$ で規格化、温度は \$J^\parallel S^2\$ で規格化、磁場は \$J^\parallel S\$ で規格化した。

	$T_c^{H=0}$	$H_c^{T=0}$	$(T_{\text{tri}}, H_{\text{tri}})$	$(T_{\text{multi}}, H_{\text{multi}})$
$D = 1, J^\perp = 1$	2.27614	0.50884	(2.208839, 0.115041)	(1.387±0.003, 0.363±0.0005)
$D = 0.16, J^\perp = 8$ (CrNb ₃ S ₆)	11.3418	0.015689	(11.339474, 0.0002908)	(11.308±0.002, 0.00110±0.00004)

平均場近似の範囲内では、一様相において DM 相互作用が効かないため、クロスオーバーラインを引くのに必要な比熱と帯磁率のプロファイルは、三次元ハイゼンベルグモデルから解析的に導出することができる (Appendix D.1)。図 3.1, 3.3 の青点線、および緑の一点鎖線は、それぞれ比熱のピーク位置から求めたクロスオーバーライン、および帯磁率のピーク位置から求めたクロスオーバーラインである。比熱はエントロピーの大小に関係するため、前者をエントロピークロスオーバー (ec)、帯磁率は磁気モーメントの長さ ($|M_\ell| = \sqrt{(M_\ell^x)^2 + (M_\ell^y)^2 + (M_\ell^z)^2}$) に関係するため、後者を磁気クロスオーバー (mc) と呼ぶことにする。常磁性相はエントロピーが大きく、磁気モーメントの長さは短い。一方、強制強磁性相はエントロピーが小さく、磁気モーメントは長くなっている。二つのクロスオーバーライン ec, mc の間の領域は、エントロピーが大きく、磁気モーメントが長い領域であると言える。

ここで、磁気クロスオーバーが、三重臨界点 T にかなり接近することに注目したい。これはエントロピークロスオーバーよりも、磁気クロスオーバーの方が、相転移の性質との関連が高いことを示唆している。この関係については、3.5 節においても言及する。磁気クロスオーバーは CrNb₃S₆ を用いた実験においても観測されている [55]。

3.2 相転移の種類と物理量

この節では、相転移の種類の違いが、物理量の振る舞いにどのように現れるかを調べる。ここでは磁化と比熱、およびエントロピーに着目する。これらの物理量は、カイラルらせん磁性体 CrNb₃S₆ や YbNi₃Al₉ に対して、実験的に観測されている (CrNb₃S₆ [30–32, 55–57, 60, 76–78], YbNi₃Al₉ [79–82])。

3.2.1 磁化曲線

図 3.4 に、磁化曲線を示す。磁化 $\mathbf{m} = (m_x, m_y, m_z)$ は以下のように計算される：

$$\mathbf{m}/S = \sum_{\ell} \mathbf{M}_\ell / (N_z S). \quad (3.2.1)$$

ここで、外部磁場は x 軸方向にかかっているため、 $m_y = m_z = 0$ となる。図 3.4(a) は、磁化の磁場依存性をいくつかの温度について調べたものである。低温 ($T/(J^\parallel S^2) = 0.01, 0.51, 1.01$) では、相転移は核生成型の二次転移となる。磁化は転移点近傍で傾きが無限大となり、連続的に変化する。この相転移の描像としては、磁場を上げていくにつれ、ソリトンが抜けていき、転移点で無限個のソリトンが消失する振る舞いとなる。カイラルサインゴールドンモデルで解析されてきたのは、この相転移の振る舞いである [38, 40]。

一方、 $T/(J^{\parallel}S^2) = 2.23$ は、不安定型の二次転移である。この相転移では、転移点近傍においてもらせん構造の周期はほとんど変化せず、磁気モーメントの長さが短くなることによって相転移が起こる。磁化は有限の傾きで転移点に近づき、連続的に変化する。

一次転移 ($T/(J^{\parallel}S^2) = 1.51, 1.91$) においては、磁化は有限の傾きを持って転移点に近づき、不連続に変化する。この相転移では、すべてのソリトンが抜けきる前、もしくは磁気モーメントの長さが十分に短くなる前に相転移を起こす。

$T/(J^{\parallel}S^2) = 2.51$ は、一様相であるので、磁化に特異な点は見られない。

図 3.4(b) は磁化の温度依存性をいくつかの磁場についてプロットしたものである。 $H/(J^{\parallel}S) = 0.6$ は一様相における磁化曲線で、磁化に特異な点はない。 $H/(J^{\parallel}S) = 0.4$ は核生成型の二次転移で、ここでも磁化は転移点近傍で急激に増大し、転移点で傾きが無限大となる。磁化曲線が階段状になっているのは、有限サイズ効果によるものであり、ソリトンが抜ける際に磁化がステップ状に変化する。 $H/(J^{\parallel}S) = 0.2, 0.3$ は一次転移の領域で、磁化は不連続に変化している。 $H/(J^{\parallel}S) = 0.1, 0$ は不安定型の二次転移であり、磁化は有限の傾きで転移点に近づき、連続的に変化する。特にゼロ磁場では、磁化は常に 0 である。

不安定型の二次転移の領域では、緩和が非常に遅くなるため、転移点の決定や、転移の種類 (一次転移か二次転移か) の見極めには細心の注意が必要である。図 3.5 は、不安定型の二次転移のときの磁化の振る舞いの iteration 依存性である。磁化が飛んでいる点があるため、一見したところは一次転移に見える。しかし、iteration 依存性を調べると、磁化が飛ぶときの温度 T^* は徐々に低温にシフトし (図 3.5(b))、磁化の飛び δm_x は小さくなっていくのが分かる (図 3.5(c))。転移温度 T_c^H は、 $\delta m_x = 0$ となる iteration における温度 T^* で定義する。図 3.5(c) は磁化の飛び δm_x を iteration の逆数の関数としてプロットしたものである。これをフィッティングパラメータ a, b, c を用いて、関数 $f(x) = a(x - c)^b$ でフィッティングすると、 $a = 0.265 \pm 0.001$, $b = 0.5346 \pm 0.0005$, $c = 1.42 \times 10^{-7} \pm 2 \times 10^{-9}$ を得た。ここから、約 10^7 iteration で磁化の飛びが 0 になることが期待される。図 3.5(b) において、直線でフィッティングを行い、 10^7 iteration

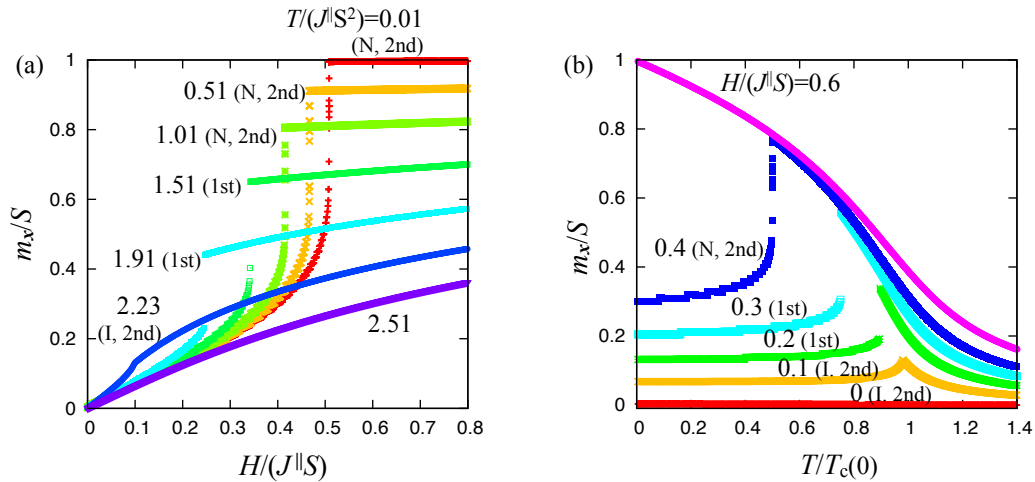


図 3.4: (a) 磁化の磁場依存性。 $T/(J^{\parallel}S^2) = 0.01 - 1.01$ は核生成型の二次転移 (N, 2nd)、 $T/(J^{\parallel}S^2) = 1.41, 1.91$ は一次転移 (1st)、 $T/(J^{\parallel}S^2) = 2.23$ は不安定型の二次転移 (I, 2nd) である。(b) 磁化の温度依存性。 $H/(J^{\parallel}S) = 0, 0.1$ は不安定型の二次転移、 $H/(J^{\parallel}S) = 0.2, 0.3$ は一次転移、 $H/(J^{\parallel}S) = 0.4$ は核生成型の二次転移。パラメータは $D/J^{\parallel} = 1$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 1$ を用い、システムサイズは $N_z = 400$ とした。

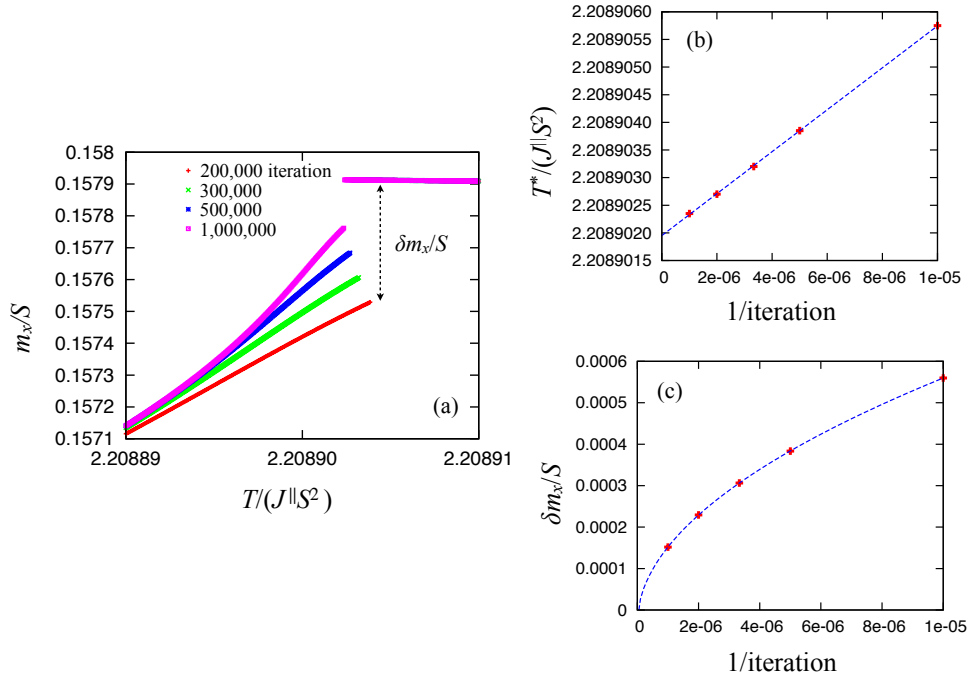


図 3.5: (a) $D/J^{\parallel} = 1$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 1$, $H/(J^{\parallel}S) = 0.115$ のときの磁化カーブを、いくつかの iteration ごとにプロットした図。(b) 磁化が飛ぶときの温度 T^* の iteration 依存性。青い点線はフィッティング関数。(c) 磁化の飛び $\delta m_x/S$ の iteration 依存性。青い点線はフィッティング関数。

における T^* を評価すると、 $D/J^{\parallel} = 1$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 1$, $H/(J^{\parallel}S) = 0.115$ のときの転移温度が $T_c^H/(J^{\parallel}S^2) = 2.20890195 \pm 0.00000001$ であることが分かる。 δm_x や T^* の振る舞いは、パラメーターや温度の刻み幅等に依存する。

3.2.2 比熱の温度依存性

次に比熱の振る舞いを調べる。比熱はエネルギー $E = \langle \mathcal{H} \rangle = N_{2d} \sum_{\ell} (-\mathbf{H}_{\ell}^{\text{eff}} \cdot \mathbf{M}_{\ell} + C_{\ell})$ の温度微分

$$c = \frac{1}{N} \frac{dE}{dT} \quad (3.2.2)$$

によって与えられる⁶。これを、ここでは数値微分

$$c = \frac{1}{N} \frac{\Delta E}{\Delta T} \quad (3.2.3)$$

により評価することにする。

図 3.6(a) に、一例として、 $D/J^{\parallel} = 1$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 1$, $H/(J^{\parallel}S) = 0.4$ における比熱の温度依存性を示す。ここで、 $\Delta T/(J^{\parallel}S^2) = 0.00625$ とした。高温側で見られる滑らかなピークは、エントロピークロスオーバーに対応し、三次元ハイゼンベルグモデルと振る舞いが一致する。一方で、秩序相内においては、有限サイズ効果に由来する細かなピークが存在している。図 3.6 の挿入図は、システムサイズを変化させたときの、比熱の細かなピークの変化を示している。システムサイズ

⁶ これの解析的な表式は Appendix D.2 において与える。

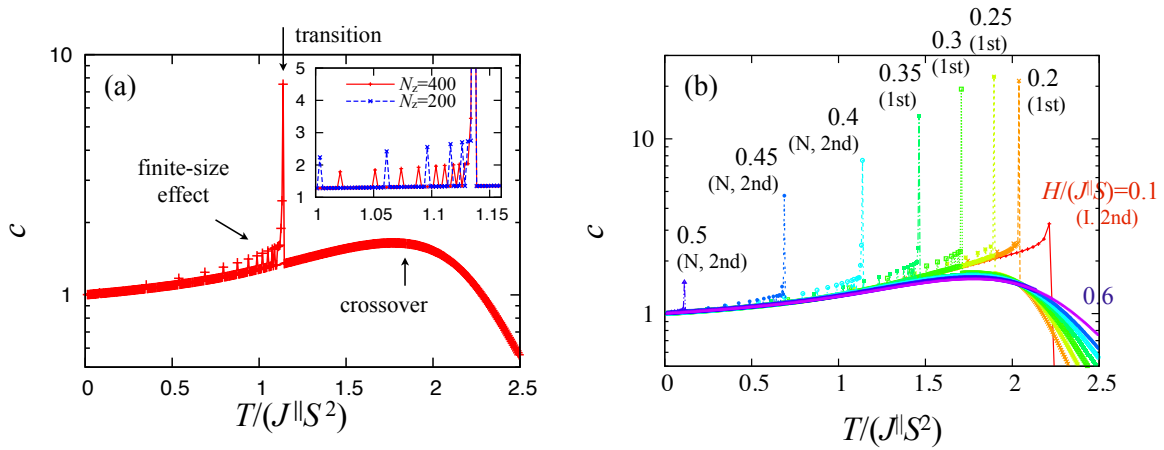


図 3.6: (a) $D/J^{\parallel} = 1$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 1$, $H/(J^{\parallel}S) = 0.4$ (核生成型の二次転移) における比熱の温度依存性。システムサイズは $N_z = 400$ とした。挿入図は転移点近傍の比熱のシステムサイズ依存性。(b) いくつかの磁場に対する比熱の温度依存性。 $H/(J^{\parallel}S) = 0.1$ は不安定型の二次転移 (I, 2nd)、 $H/(J^{\parallel}S) = 0.2 - 0.35$ は一次転移 (1st)、 $H/(J^{\parallel}S) = 0.4 - 0.5$ は核生成型の二次転移 (N, 2nd)、 $H/(J^{\parallel}S) = 0.6$ は一様相における比熱の振る舞いである。

を大きくしていくと、ピークの高さは低くなり、ピークの個数は増える。有限サイズ系では、温度や磁場を変えたときに、安定解のソリトン数が不連続に変化する。ソリトン数が変化するとき、エネルギーはステップ状に変化する。比熱はエネルギーの微分量であるので、エネルギーのステップ状の振る舞いに連動して、比熱にピークが現れる。同時に、磁化にもステップ状の振る舞いが生じる [61]。

モンテカルロ法を用いた計算では [50]、このような比熱の小さなピークは捉えられない。これはモンテカルロ計算は様々なソリトン数をもつ状態の統計平均をとっているからである。一方で、実験的には微小試料を用いて磁化 [60] や、磁気抵抗 [1, 58, 78] にステップ状の振る舞いが観測されており、このような試料を用いれば比熱の微小ピークは観測しうると考えられる。

図 3.6(b) に、温度-比熱曲線の磁場依存性を示す。温度の刻み幅は $\Delta T/(J^{\parallel}S^2) = 0.00625$ とした。不安定型の二次転移 ($H/(J^{\parallel}S) = 0.1$) では、温度を上げていくと比熱は転移点に向かって大きくなるが、転移点の上下で傾きは有限である。平均場近似の範囲内で、比熱の解析的な表式を得ることもできる。不安定型の二次転移における比熱の振る舞いは、解析的な表式でも良く評価される。詳細は Appendix D.2 に記す。

一方で、核生成型の二次転移では、転移点よりも低温側で比熱は発散し、高温側では傾きが有限となる。この比熱の振る舞いは Dzyaloshinskii が初めに示したもので [38]、低温側と高温側で臨界指数が異なる特異な振る舞いとなる。図 3.6(b) の $H/(J^{\parallel}S) = 0.4 - 0.5$ を見ると発散していないように見えるが、これは ΔT を有限にしかとることができないためである。

一次転移の領域 ($H/(J^{\parallel}S) = 0.2 - 0.35$) では、ソリトンが抜けきる前、もしくは磁気モーメントが十分に短くなる前に相転移を起こすため、比熱は転移点の上下で傾きは有限である。熱力学極限では、転移点直上の比熱は定義されないが、今は有限サイズの系で有限の温度幅 ΔT におけるエネルギーの変化量として比熱を評価しているため、 ΔT が転移点をまたぐときに比熱にピークが形成される。つまり、 ΔT の温度幅で、有限個のソリトンが生成 (または消失) したときのエネルギー差が、比熱のピークとして現れている。

3.2.3 エントロピー

ここでは特に一次転移の際のエントロピー $s = (E - F)/T$ の振る舞いに着目する。図 3.7 は一次転移と核生成型の二次転移の領域の磁場において、エントロピーの温度依存性をプロットしたものである。核生成型の二次転移の際 (図 3.7(c))、転移点近傍の秩序相内でエントロピーの傾きが無限大になり、連続的な変化をする。一方、一次転移の際 (図 3.7(a), (b)) にはエントロピーに飛び Δs が生じる。例えば、 $D/J^{\parallel} = 1$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 1$, $H/(J^{\parallel}S) = 0.2$ のパラメーターにおいては、一次転移の際のエントロピーの飛びは 1 サイトあたりで $\Delta s/N \simeq 0.06$ 程度⁷であり、1 本のらせんに対する 1 ソリトンあたりでは約 0.5 となる。

CrNb₃S₆ のパラメーターにおいては、例えば $H/(J^{\parallel}S) = 0.0005$ (一次転移) において、エントロピーの飛びは 1 サイトあたりで $\Delta s/N \simeq 0.0004$ 程度、1 本のらせんに対する 1 ソリトンあたりでは約 0.016 程度となる。また、1mm 角くらいの試料 ($N = N_x N_y N_z \simeq 10^{18}$ サイト) を考えたとき、 $\Delta s \simeq \mathcal{O}(10^{14})$ となる。ここで、単位としているボルツマン定数は $k_B = 1.38 \times 10^{-23}$ [J/K] であるので、転移温度 $T_c \simeq \mathcal{O}(10^2)$ を用いて、1mm 角の CrNb₃S₆ 試料の潜熱が $T_c \Delta s \simeq \mathcal{O}(10^{-7})$ [J] 程度のオーダーとなることが見積もられる。

これは他の一次転移を示す物質と比較して小さいと言える。一般的な金属は 1 サイトあたりで $\Delta s/N \simeq 1$ 程度のもが多い (表 3.2)。また、銅酸化物超伝導体 Bi₂Sr₂CaCu₂O₈ の磁束格子融解転移 (一次転移) におけるエントロピーの不連続性を調べた実験では、1 つの渦糸の Cu-O 層 1 枚あたりで 0.06~0.3 程度であることが示されている [83, 84]。

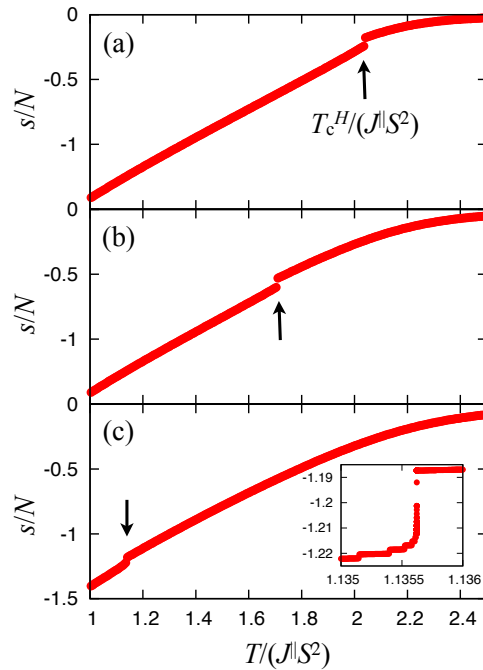


図 3.7: エントロピーの温度依存性。パラメーターは $D/J^{\parallel} = 1$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 1$, (a) $H/(J^{\parallel}S) = 0.2$ (一次転移), (b) $H/(J^{\parallel}S) = 0.3$ (一次転移), (c) $H/(J^{\parallel}S) = 0.4$ (核生成型の二次転移)。(c) の挿入図は転移点近傍の拡大図。

⁷ボルツマン定数 k_B を単位とする。

表 3.2: いくつかの物質についての融解熱 (潜熱) と融解点 T_{fus} 、およびこれらから算出したエントロピーの飛び。融解熱と T_{fus} のデータは理科年表 (平成 30 年, 丸善出版) より。

物質	T_{fus} [°C]	融解熱 [kJ/mol]	$\Delta s/N$ (1 格子点あたり)
亜鉛 (Zn)	419.6	6.57	$1.14 k_B$
アルミニウム (Al)	660.1	10.7	$1.38 k_B$
金 (Au)	1064.2	12.7	$1.14 k_B$
銀 (Ag)	961.8	11.3	$1.10 k_B$
水銀 (Hg)	-38.8	2.33	$1.20 k_B$
鉄 (Fe)	1535	15.1	$1.01 k_B$
銅 (Cu)	1084.6	13.3	$1.18 k_B$
ニッケル (Ni)	1455	17.6	$1.23 k_B$
マグネシウム (Mg)	651	9.2	$1.20 k_B$
メタン (CH ₄)	-182.6	0.94	$1.25 k_B$
メタノール (CH ₃ OH)	-97.8	3.17	$2.18 k_B$
エタノール (C ₂ H ₅ OH)	-114.5	5.02	$3.81 k_B$
塩化ナトリウム (NaCl)	800.4	28.2	$3.16 k_B$
水 (H ₂ O)	0.0	6.01	$2.65 k_B$
酸素 (O ₂)	-218.8	0.44	$0.97 k_B$
二酸化炭素 (CO ₂)	-56.2	8.33	$4.62 k_B$

表 3.3: エントロピーと磁化の飛びの比 $S\Delta s/(N\Delta m_x)$ と、相図の傾き dH/dT との関係。パラメーターは $D/J^{\parallel} = 1$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 1$ を用いた。有効数字に関しては脚注 5 を参照。

$H/(J^{\parallel}S)$	$\Delta s/N$	$\Delta m_x/S$	$S\Delta s/(N\Delta m_x)$	dH/dT
0.15	0.03214	0.06156	0.522	-0.52
0.2	0.05945	0.1489	0.399	-0.40
0.25	0.06706	0.2174	0.308	-0.31
0.3	0.06037	0.2551	0.237	-0.24
0.35	0.03844	0.2164	0.178	-0.18

エントロピーの飛びは小さいため、潜熱 $T\Delta s$ を直接測定するよりも、磁化の飛びから算出した方が有効であると考えられる。エントロピーの飛び $\Delta s/N$ と、一次転移に由来する磁化の飛び $\Delta m_x/S$ との間にはクラウジウス-クラペイロンの関係式

$$\frac{dH}{dT} = -\frac{\Delta s/N}{\Delta m_x/S} \quad (3.2.4)$$

が成り立つ。つまり、 Δs , Δm_x の比は、温度-磁場相図の傾きと逆符号で等しい。この関係を $D/J^{\parallel} = 1$, J のパラメーターにおけるいくつかの点について調べたものを、表 3.3 にまとめる。数値精度の範囲内でよく一致しているのが分かる。CrNb₃S₆ のパラメーターにおいては、 $H/(J^{\parallel}S) = 0.0005$ (一次転移) における磁化の飛びは $\Delta m_x/S = 0.01$ 程度である。

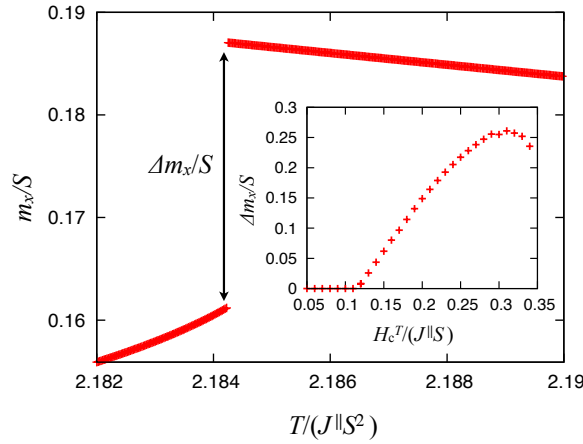


図 3.8: 一次転移の領域における、転移点近傍の磁化の温度依存性。パラメータは $D/J^{\parallel} = 1$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 1$, $H/(J^{\parallel}S) = 0.13$ を用いた。挿入図は、転移点に沿って調べた磁化のジャンプ幅。

3.3 相転移の次数の評価と一次転移の観測可能性

この節では、磁化曲線および自由エネルギーのプロファイルを用いて相転移の次数を評価する。また、一次転移の領域において、自由エネルギーにダブルミニマムの構造が見られることを示し、そのエネルギーバリアを評価することによって、一次転移の観測可能性について議論する。

3.3.1 三重臨界点の評価

まず、不安定型の二次転移と一次転移が入れ替わる、三重臨界点を評価する。図 3.8 に、一次転移の領域における磁化曲線を示す。一次転移の際、磁化は転移点で不連続に変化する⁸。この磁化の飛びを相境界に沿って調べると、低磁場側で 0 になることが分かる。この点が三重臨界点である。 $D/J^{\parallel} = 1$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 1$ のパラメータに対しては、三重臨界点の磁場の値として $H_{\text{tri}}/(J^{\parallel}S) = 0.1155 \pm 0.0005$ が得られる。このとき、温度は $T_{\text{tri}}/(J^{\parallel}S^2) = 2.2081 \pm 0.0008$ である。一方、 CrNb_3S_6 のパラメータ $D/J^{\parallel} = 0.16$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 8$ では、 $H_{\text{tri}}/(J^{\parallel}S) = 0.000295 \pm 0.000005$, $T_{\text{tri}}/(J^{\parallel}S^2) = 11.33942 \pm 0.00009$ が得られる。

三重臨界点より低磁場の領域における相転移は、小さい秩序変数を持つ不安定型の二次転移である。この領域の転移点は、ランダウ理論を用いて、自由エネルギーの展開によって解析的に求めることもできる [45]。低磁場の領域において、一様相 (常磁性相) は $M_{\ell}^x = M_0$, $M_{\ell}^y = 0$ と表せる。ここで、有効磁場 H_{ℓ}^{eff} は $H_0 \equiv 2J^{\parallel}M_0 + 4J^{\perp}M_0 + H$ とかけ、 $M_0 = S[\coth(\beta SH_0) - 1/(\beta SH_0)]$ である。一様相の安定限界を調べるため、微量 ξ を定義し、 M_{ℓ}^x, M_{ℓ}^y を以下のように展開する。

$$M_{\ell}^x = M_0 + \xi\sigma_1 \cos(q\ell) + \xi^2[A + \bar{\sigma}_1 \cos(2q\ell)] + \xi^3\bar{\sigma}_1 \cos(3q\ell) + \xi^4[B + \bar{\bar{\sigma}}_1 \cos(4q\ell)] + \dots \quad (3.3.1)$$

$$M_{\ell}^y = -\xi\sigma_2 \sin(q\ell) - \xi^2\bar{\sigma}_2 \sin(2q\ell) - \xi^3\bar{\bar{\sigma}}_2 \sin(3q\ell) - \xi^4\bar{\bar{\bar{\sigma}}}_2 \sin(4q\ell) + \dots \quad (3.3.2)$$

ここで、相境界近傍の非一様相において、状態は波数 $q = \bar{q} + \alpha\xi^2 + \dots$ の周期構造を持つと仮定する。また、 $\sigma_1, \sigma_2, \bar{\sigma}_1, \bar{\sigma}_2, \bar{\bar{\sigma}}_1, \bar{\bar{\sigma}}_2, \bar{\bar{\bar{\sigma}}}_1, \bar{\bar{\bar{\sigma}}}_2, A, B, \bar{q}, \alpha$ は任意の定数で、 $\sigma_1^2 + \sigma_2^2 = 1$ を満たすとす

⁸このときの飛び幅は iteration 回数に依存しない。

る。これらを、自由エネルギーの表式 (2.2.3) に入れて、以下のように自由エネルギーを ξ の関数として展開する：

$$F/N = f_0 + a_2 \xi^2 + a_4 \xi^4 + \dots \quad (3.3.3)$$

ここで、

$$f_0 = -\frac{1}{\beta N_z} \sum_{\ell} \log \left(\frac{\sinh(\beta S H_0)}{\beta S H_0} \right) + \frac{1}{2} (H_0 - H) M_0 \quad (3.3.4)$$

である。展開係数 a_2, a_4 を求めると、

$$h_1 \equiv J^{\parallel} \sigma_1 \cos \bar{q} + 2J^{\perp} \sigma_1 - D \sigma_2 \sin \bar{q} \quad (3.3.5)$$

$$h_2 \equiv J^{\parallel} \sigma_2 \cos \bar{q} + 2J^{\perp} \sigma_2 - D \sigma_1 \sin \bar{q} \quad (3.3.6)$$

$$\bar{h}_1 \equiv J^{\parallel} \bar{\sigma}_1 \cos(2\bar{q}) + 2J^{\perp} \bar{\sigma}_1 - D \bar{\sigma}_2 \sin(2\bar{q}) \quad (3.3.7)$$

$$\bar{h}_2 \equiv J^{\parallel} \bar{\sigma}_2 \cos(2\bar{q}) + 2J^{\perp} \bar{\sigma}_2 - D \bar{\sigma}_1 \sin(2\bar{q}) \quad (3.3.8)$$

らを用いて

$$a_2 = -\frac{\partial M_0}{\partial H_0} h_1^2 - \frac{M_0}{H_0} h_2^2 + \frac{1}{2} (J^{\parallel} \cos \bar{q} + 2J^{\perp} - 2D \sigma_1 \sigma_2 \sin \bar{q}) \quad (3.3.9)$$

$$\begin{aligned} a_4 = & -2A^2 \frac{\partial M_0}{\partial H_0} (J^{\parallel} + 2J^{\perp})^2 + A^2 (J^{\parallel} + 2J^{\perp}) + \frac{1}{2} \bar{h}_1 \bar{\sigma}_1 + \frac{1}{2} \bar{h}_2 \bar{\sigma}_2 - \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \bar{h}_1^2 - \frac{M_0}{H_0} \bar{h}_2^2 \\ & - 2A \frac{\partial^2 M_0}{\partial H_0^2} (J^{\parallel} + 2J^{\perp}) h_1^2 + \left(\frac{2M_0}{H_0^2} - \frac{2}{H_0} \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \right) A (J^{\parallel} + 2J^{\perp}) h_2^2 \\ & - \frac{1}{4} \frac{\partial^3 M_0}{\partial H_0^3} h_1^4 + \left(\frac{3M_0}{4H_0^3} - \frac{3}{4H_0^2} \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \right) h_2^4 - \left(\frac{M_0}{H_0^3} + \frac{1}{2H_0} \frac{\partial^2 M_0}{\partial H_0^2} - \frac{1}{H_0^2} \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \right) h_1^2 h_2^2 \\ & - \frac{\partial^2 M_0}{\partial H_0^2} h_1^2 \bar{h}_1 + \left(-\frac{M_0}{H_0^2} + \frac{1}{H_0} \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \right) h_2^2 \bar{h}_1 + \left(\frac{2M_0}{H_0^2} - \frac{2}{H_0} \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \right) h_1 h_2 \bar{h}_2 \quad (3.3.10) \end{aligned}$$

を得る。計算の詳細は Appendix E に載せる。一般に不安定型の二次転移の相境界は $a_2 = 0$ の条件から求められ、三重臨界点は $a_2 = 0$ かつ $a_4 = 0$ の条件から導かれる [85]。これによって求められた相境界は、磁化曲線から求めた相境界とよく一致し (図 3.9)、 $D/J^{\parallel} = 1, J^{\perp}/J^{\parallel} = 1$ のパラメーターについて、三重臨界点は $T_{\text{tri}}/(J^{\parallel} S^2) = 2.208839, H_{\text{tri}}/(J^{\parallel} S) = 0.115041, D/J^{\parallel} = 0.16, J^{\perp}/J^{\parallel} = 8$ のパラメーターについて、三重臨界点は $T_{\text{tri}}/(J^{\parallel} S^2) = 11.339474, H_{\text{tri}}/(J^{\parallel} S) = 0.0002908$ と求められる。

3.2 節に示したように、不安定型二次転移の領域は緩和が遅いため、二分法などを用いて三重臨界点を決定するのは難しく、数値精度に限界がある。数値的には、例えば $D/J^{\parallel} = 1, J^{\perp}/J^{\parallel} = 1$ のパラメーターでは $H/(J^{\parallel} S) = 0.115$ が不安定型の二次転移、 $H/(J^{\parallel} S) = 0.116$ が一次転移であることを確認し、三重臨界点がこの間にあると決定した。ランダウの自由エネルギーを用いた手法は、より正確な三重臨界点の値を評価するのに有効な手法である。

3.3.2 多重臨界点の評価

図 3.8 を見ると、高磁場側でまた磁化の飛びは小さくなっていき、核生成型の二次転移との境界で 0 となる。多重臨界点はこの点を見つけることで評価すれば良いのであるが、核生成型の二

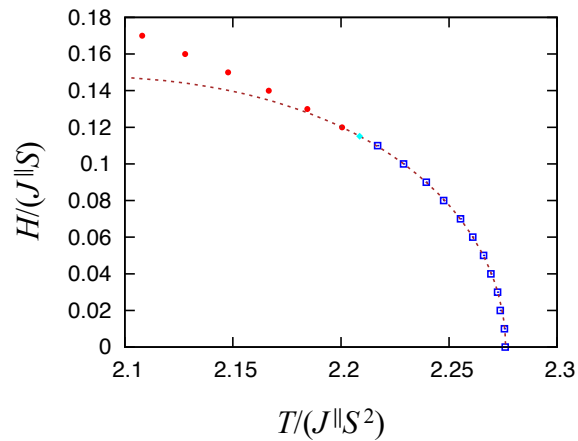


図 3.9: 不安定型の二次転移近傍の相図。赤●が不連続転移、青口が不安定型の二次転移、茶色の点線が $a_2 = 0$ のライン、水色◆が $a_2 = 0$ かつ $a_4 = 0$ の点 (三重臨界点) を表している。

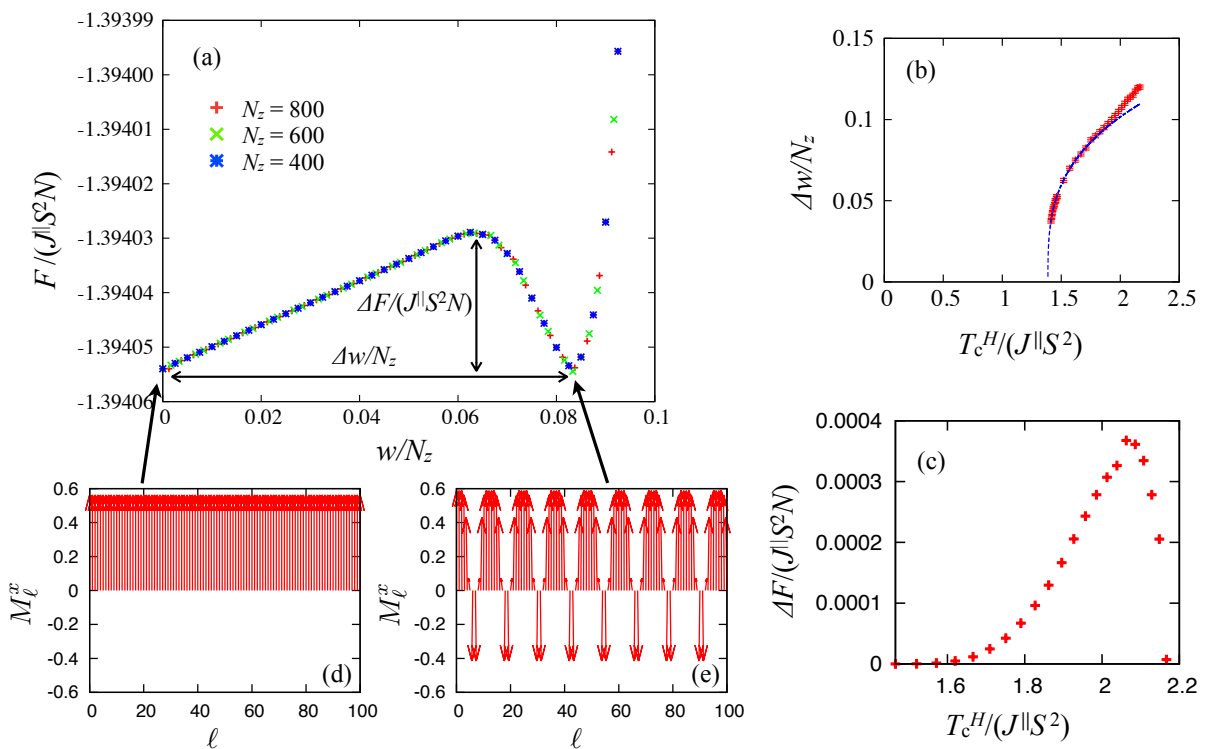


図 3.10: (a) いくつかのシステムサイズに対してとった、転移点における自由エネルギーのソリトン数依存性。パラメーターは $D/J^{\parallel} = 1$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 1$, $H/(J^{\parallel}S) = 0.3$ 。このとき、転移温度は $T_c^H/(J^{\parallel}S^2) = 1.70955$ である。(b) 二つの準安定解のソリトン密度の差 $\Delta w/N_z$ を相境界に沿って調べたもの。(c) 相境界に沿って調べたエネルギーバリアの高さ。(d) $w = 0$ (強制強磁性的な準安定状態) における磁気構造。(e) 準安定カイラルソリトン格子状態の磁気構造。

次転移における磁化曲線は転移点で傾きが無限大に発散するため、数値計算によって磁化の飛びが0になることを評価するのはきわめて難しい。そこで、多重臨界点の評価には自由エネルギーのプロファイルを利用する。

図 3.10 は、一次転移の領域で、転移点における自由エネルギーのソリトン数依存性を示したものである。一次転移の領域では、自由エネルギーはこの図に示されるようなダブルミニマムの構造を呈する。多重臨界点に近づくと、二つの準安定解のソリトン密度の差 Δw が徐々に小さくなっていく⁹。その様子を示したのが図 3.10(b) である。我々はフィッティング関数として

$$h(x) = \rho(x - \tau)^{1/\sigma} \quad (3.3.11)$$

を用意し (ρ, σ, τ はフィッティングパラメーター)、 $D/J^{\parallel} = 1$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 1$ のパラメーターについて $x = T_c^H/(J^{\parallel}S) \leq 1.6$ の領域でフィッティングを行った。その結果、 $\rho = 0.118 \pm 0.003$, $\sigma = 3.1 \pm 0.1$ が得られ、多重臨界点の温度 $\tau \equiv T_{\text{multi}}/(J^{\parallel}S^2) = 1.387 \pm 0.003$ および多重臨界点の磁場 $H_{\text{multi}}/(J^{\parallel}S) = 0.3633 \pm 0.0005$ が求まる。

3.3.3 一次転移のクロスオーバー

一次転移の領域では、ソリトンの振る舞いが顕著な核生成型の一次転移と、モーメントの長さの振る舞いが顕著な不安定型の一次転移の領域がクロスオーバーすると考えられる。クロスオーバーを定義する方法は一意ではなく、何らかの物理量に現れるピーク構造を一つの指標とする考えが一般的である。例えば、図 3.8 挿入図にある磁化のジャンプ幅は、 $H_c^T(J^{\parallel}S) \simeq 0.3$ にピークを持ち、これが一つの指標となる。また、別の取り方として、図 3.10(c) に示す、エネルギーバリア ΔF が作るピーク位置をクロスオーバーとして捉えることもできる。これらの点は基準とする物理量が異なるため、一致しない。

3.3.4 一次転移の観測可能性

ここで、自由エネルギーに現れるダブルミニマムの構造の、エネルギーバリアに着目してみる。実験的に一次転移が観測されるためには、このエネルギーバリアが熱エネルギーよりも十分高い必要がある。

図 3.10(a) に示した、自由エネルギーのプロファイルから、エネルギーバリアが評価できるように見えるが、相分離をした状態を考えると、より低いエネルギーバリアを考えることができる。我々は磁気構造の初期配置として、図 3.10(d), (e) を、右半面、左半面において結合させたような磁気配置 (図 3.11(a)) を用意した。この配置から、平均場方程式を 100,000 回解いた後の磁気配置が、図 3.11(b) のようになった。磁気配置はほとんど変化しない。左半面におけるソリトン数は任意に変化させることができるので、我々はここでも自由エネルギーのソリトン数依存性を評価することができる。この相分離状態の自由エネルギープロファイルを示したのが、図 3.12 である。この図では相分離していない系の自由エネルギープロファイルも一緒にプロットしている。縦軸に注意すると、図 3.10(a) は $F/(J^{\parallel}S^2N)$ であったのに対し、図 3.12 は $F/(J^{\parallel}S^2N_{2d})$ である。相分離していない状態では、単位体積あたりの自由エネルギーでみると、エネルギーバリアはシステムサイズに依存していなかった。つまり、系全体で見るとエネルギーバリアがシステムサイズに依存する。一方、相分離状態は、エネルギーバリアは N_{2d} のみに依存し、 N_z に依らない。これは相分離状態では、カイラルソリトン状態と強制強磁性状態が接続する界面部分でのみ、

⁹ダブルミニマム間の距離 Δw は、三重臨界点に近づいても 0 にはならない。

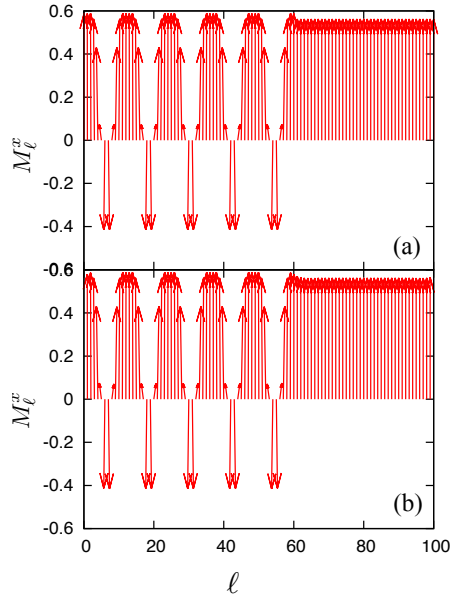


図 3.11: (a) 初期磁気配置。左半分 ($\ell < 60$) は、図 3.10 (e) の状態の一部を切り取ったもので、右半分は図 3.10 (d) の状態。パラメーターは $D/J^{\parallel} = 1$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 1$, $H/(J^{\parallel}S) = 0.3$, $T_c^H/(J^{\parallel}S^2) = 1.70955$ とした。 (b) 100,000 MF iteration の後の磁気配置。

エネルギー損失が生じるためである。この事実は、自由エネルギーのプロファイルが台形型をしていて、エネルギーバリアがソリトン数 w に依存しないことにも関係する。このエネルギーバリアの起源である部分を界面 (interface) と呼び、相分離状態が作るエネルギーバリアのことを界面エネルギー (interface energy) と呼ぶ。カイラルらせん磁性体の界面エネルギーは、ちょうどソリトン半分のエネルギーに等しくなる。

まず、 $D/J^{\parallel} = 1$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 1$ のときの界面エネルギーを評価する。図 3.12 より、 $H/(J^{\parallel}S) = 0.3$ において、界面エネルギーは $\Delta F/(J^{\parallel}S^2N_{2d}) = 4 \times 10^{-4}$ である。ここで、我々は周期境界条件を課しているため、系の中に二つの界面があると考えられる。すると、界面一つあたりのエネルギーは、半分の $\Delta F/(J^{\parallel}S^2N_{2d}) = 2 \times 10^{-4}$ 程度である。一次転移の傾向を捉えるためには、界面エネルギーが熱エネルギー $k_B T$ よりも十分大きくなければならない。今、 $T/(J^{\parallel}S^2) = T_c^H/(J^{\parallel}S^2) = 1.70955$ なので、

$$\Delta F/(J^{\parallel}S^2) > T/(J^{\parallel}S^2) \quad (3.3.12)$$

$$\Rightarrow 2 \times 10^{-4} N_{2d} > 1.70955 \quad (3.3.13)$$

$$\Rightarrow N_{2d} > 9 \times 10^3 \quad (3.3.14)$$

の条件を得る。これは、モンテカルロ計算などで三次元カイラルらせん磁性体の一次転移を捉えるためには、らせんに垂直な二次元平面に約 1 万サイト必要であることを意味する。

実際の磁場中カイラルらせん磁性体のモンテカルロ計算 [50] では、二次元平面のシステムサイズとして最大で $64 \times 64 = 4096$ サイトまでとっている。一次転移の予兆が見えても良いと考えられるが、それが捉えられていない理由はいくつか考えられる。まずは熱ゆらぎの効果によって一次転移の領域が完全につぶれてしまっている可能性である。平均場近似による結果は、一次転移の存在を保証するものではない。また、一次転移が残るとしても、熱ゆらぎの効果によってその存在領域が移動したり、一次転移の領域が狭くなってしまう可能性もある。また、平均場近似に

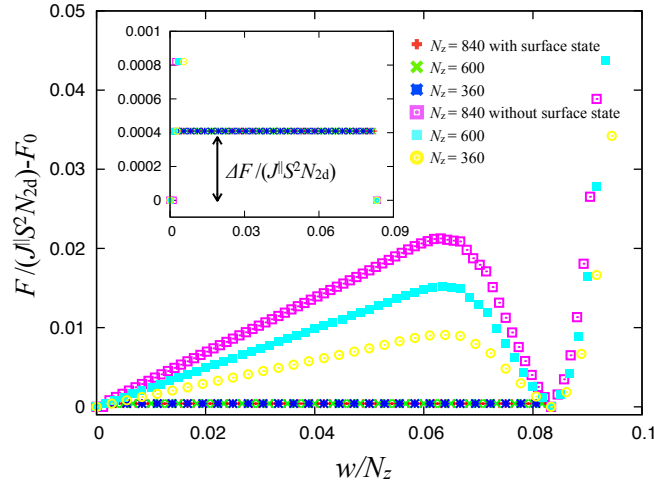


図 3.12: いくつかのシステムサイズでとった、自由エネルギープロファイル。パラメータは $D/J^{\parallel} = 1$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 1$, $H/(J^{\parallel}S) = 0.3$, $T_c^H/(J^{\parallel}S^2) = 1.70955$ 。 $w/N_z = 0.06$ 付近にピークが現れるのは、図 3.10(a) で示したものと同一、磁壁が存在しない (一様な CSL) 状態についてのプロファイルである。図 3.10(a) と異なり、縦軸が F/N_{2d} であるため、システムサイズ N_z に依存している。一方、 $0 \lesssim w/N_z \lesssim 0.08$ において一定の自由エネルギーは、相分離した状態についてのものであり、システムサイズ N_z に依存しない。挿入図は、この自由エネルギープロファイルを拡大したものの。

よって界面エネルギーが過大に評価されていることも考えられる。界面のエネルギーが熱ゆらぎによって小さくなるとすると、一次転移を捉えるために必要なシステムサイズは、さらに大きい方向へと修正される。この場合、新たな問題として計算コストとの両立が困難になる可能性が浮上する。

次に、実験と比較するため、パラメータを CrNb_3S_6 と同じ $D/J^{\parallel} = 0.16$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 8$ と設定し、 $H/(J^{\parallel}S) = 0.0006$, $T_c^H/(J^{\parallel}S^2) = 11.33123$ において界面エネルギーを取り直した。このパラメータにおいて、界面エネルギーは

$$\Delta F/(J^{\parallel}S^2 N_{2d}) = \mathcal{O}(10^{-9}) \quad (3.3.15)$$

となった。一次転移の傾向を捉えるためには、このエネルギーが熱エネルギー $k_B T$ よりも十分大きくなければならない。この条件を求めると、

$$N_{2d} > \mathcal{O}(10^{10}) \quad (3.3.16)$$

が得られる。これを CrNb_3S_6 の試料の大きさに直すと、ab 面で最低でも $2500 \mu\text{m}^2$ 必要であることになる。このサイズは非常に小さく、mm スケールの試料を用いれば十分に一次転移の振る舞いを捉えることができると考えられる。しかしながら実験ではまだ一次転移の証拠が得られていない。

実験的に一次転移の振る舞いを捉えることが難しい理由はいくつか考えられる。まず、一次転移を測定しようと考えたとき、転移点における磁化や比熱に現れる特異性やヒステリシスを観測することなどが一般的である。しかし、カイラルらせん磁性体で出現する核生成型の二次転移においては、例えば磁化曲線が無限大の傾きを持ち、一次転移の特徴である飛びと区別しにくい。また、第 4 章で詳しく述べるが、らせんの両端の効果や磁壁の生成といった別の要因におけるヒステリシスが存在することも、マクロな一次転移に起因するヒステリシスの観測を困難にする。さ

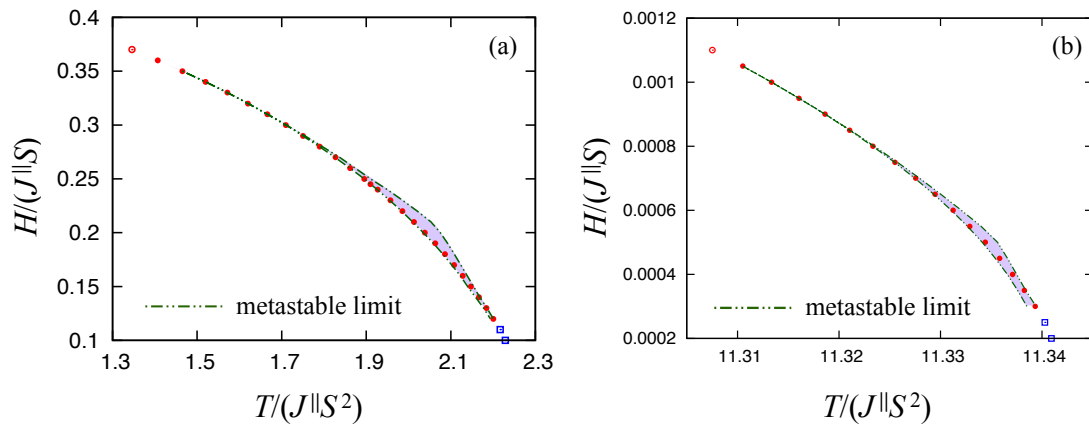


図 3.13: 一次転移の領域における、準安定状態の存在領域。(a) $D/J^{\parallel} = 1$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 1$, (b) $D/J^{\parallel} = 0.16$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 8$ 。

らに、一次転移の準安定領域は図 3.13 に示すように非常に狭い。パラメータを CrNb_3S_6 と合わせてとると、準安定領域の幅は、最も広いところで、温度で測ると 0.01 [K] 程度、磁場で測ると 5 [Oe] 程度である。実験的に一次転移を捉えるには、3.4 節で論じる孤立ソリトンの振る舞いを観測することが有効であると考えられる。

3.4 孤立ソリトンの解析と相転移¹⁰

この節では Schaub, Mukamel の孤立ソリトンの漸近形の解析 [45] に基づいて、相転移の種類と孤立ソリトンの振る舞いとの関係を調べる。

3.4.1 漸近形の解析

ある温度・磁場中において、 $\ell = 0$ に孤立ソリトンがある状態を考える。このとき、 $\ell \rightarrow \pm\infty$ においては

$$\lim_{\ell \rightarrow \pm\infty} \mathbf{M}_\ell = (M_0, 0, 0) \quad (3.4.1)$$

であるとする。この解は二次相転移の転移点近傍以外においては準安定な解である。ここで、

$$M_0 = S \left(\coth(\beta SH_0) - \frac{1}{\beta SH_0} \right) \equiv Sf(\beta SH_0), \quad H_0 = (4J^{\perp} + 2J^{\parallel})M_0 + H \quad (3.4.2)$$

である。

孤立ソリトンとして、以下のようなものを仮定し、ソリトンの漸近的な振る舞いを調べる [45, 51–53]。

$$|\mathbf{M}_\ell| = \sqrt{(M_\ell^x)^2 + (M_\ell^y)^2} \sim M_0 + A_1 e^{-\kappa\ell}, \quad (3.4.3a)$$

$$\theta_\ell = \arctan \frac{M_\ell^y}{M_\ell^x} \simeq A_2 e^{-\kappa\ell}. \quad (3.4.3b)$$

¹⁰この節は正木祐輔氏の計算ノート (未発表, 2017) に基づく。

ここで、 $\ell \gg 1$ において A_1, A_2 は微小であるとする。 κ は実数、純虚数、もしくはゼロでない実数部分を持つ虚数である。 A_1 と A_2 の一次まで考えると、

$$\mathbf{M}_\ell \sim \left(M_0 + A_1 e^{-\kappa \ell}, M_0 A_2 e^{-\kappa \ell}, 0 \right) \quad (3.4.4)$$

と書ける。これを式 (2.2.3) にいれると

$$H_\ell^{\text{eff},x} = H_0 + \left[(4J^\perp + 2J^\parallel \cosh \kappa) A_1 - 2D A_2 M_0 \sinh \kappa \right] e^{-\kappa \ell} \quad (3.4.5)$$

$$H_\ell^{\text{eff},y} = \left[(4J^\perp + 2J^\parallel \cosh \kappa) A_2 M_0 + 2D A_1 \sinh \kappa \right] e^{-\kappa \ell} \quad (3.4.6)$$

を得る。ここで、 $H_\ell^{\text{eff},x} = H_0 + \Delta_x, H_\ell^{\text{eff},y} = \Delta_y$ とおくと、 $(H_\ell^{\text{eff}})^2 = H_0^2 + 2\Delta_x H_0 + \mathcal{O}(\Delta^2)$ より、

$$H_\ell^{\text{eff}} \simeq H_0 + \Delta_x \quad (3.4.7)$$

となる。磁化の成分を計算すると、

$$\begin{aligned} M_\ell^x &= M_0 + A_1 e^{-\alpha z} = Sf(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) \frac{(H_\ell^{\text{eff}})^x}{H_\ell^{\text{eff}}} \simeq Sf(\beta S (H_0 + \Delta_x)) \frac{H_0 + \Delta_x}{H_0 + \Delta_x} \\ &\simeq Sf(\beta S H_0) + Sf'(\beta S H_0) \beta S \Delta_x \\ &= M_0 + f'(\beta S H_0) \beta S^2 \Delta_x \end{aligned}$$

$$\Rightarrow A_1 = f'(\beta S H_0) \beta S^2 \Delta_x e^{\alpha z} = f'(\beta S H_0) \beta S^2 [4J^\perp A_1 + 2J^\parallel A_1 \cosh(\alpha) - 2D M_0 A_2 \sinh(\alpha)] \quad (3.4.8)$$

および

$$\begin{aligned} M_\ell^y &= M_0 A_2 e^{-\alpha z} = Sf(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) \frac{(H_\ell^{\text{eff}})^y}{H_\ell^{\text{eff}}} \simeq Sf(\beta S (H_0 + \Delta_x)) \frac{\Delta_y}{(H_0 + \Delta_x)} \\ &\simeq S [f(\beta S H_0) + \Delta_x f'(\beta S H_0)] \Delta_y \left[\frac{1}{H_0} - \frac{\Delta_x}{H_0^2} \right] \\ &\simeq Sf(\beta S H_0) \Delta_y \frac{1}{H_0} = \frac{M_0}{H_0} \Delta_y \end{aligned}$$

$$\Rightarrow A_2 H_0 = 4J^\perp M_0 A_2 + 2J^\parallel M_0 A_2 \cosh(\alpha) + 2D A_1 \sinh(\alpha) \quad (3.4.9)$$

を得る。式 (3.4.5), (3.4.8) から $H_\ell^{\text{eff},x}$ を消去し、式 (3.4.6), (3.4.9) から $H_\ell^{\text{eff},y}$ を消去すると、

$$\begin{pmatrix} (4J^\perp + 2J^\parallel \cosh \kappa) \beta S^2 f'(\beta S H_0) - 1 & -2D M_0 \beta S^2 f'(\beta S H_0) \sinh \kappa \\ 2D \sinh \kappa & (4J^\perp + 2J^\parallel \cosh \kappa) M_0 - H_0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A_1 \\ A_2 \end{pmatrix} = 0 \quad (3.4.10)$$

が得られる。 A_1, A_2 が非自明な解を持つためには、

$$\mathcal{A} \cosh^2 \kappa + \mathcal{B} \cosh \kappa + \mathcal{C} = 0 \quad (3.4.11)$$

を満たさなければならない。ここで、 $\mathcal{A}, \mathcal{B}, \mathcal{C}$ は

$$\mathcal{A} = 4M_0 \beta S^2 \left[(J^\parallel)^2 + D^2 \right] f'(\beta S H_0) \quad (3.4.12a)$$

$$\mathcal{B} = 2J^\parallel \left[8\beta S^2 J^\perp M_0 f'(\beta S H_0) - M_0 - \beta S^2 H_0 f'(\beta S H_0) \right] \quad (3.4.12b)$$

$$\mathcal{C} = \left[4\beta S^2 J^\perp f'(\beta S H_0) - 1 \right] (4J^\perp M_0 - H_0) - 4M_0 \beta S^2 D^2 f'(\beta S H_0) \quad (3.4.12c)$$

である。ここから、我々は以下の三つのパターンを考えることができる。

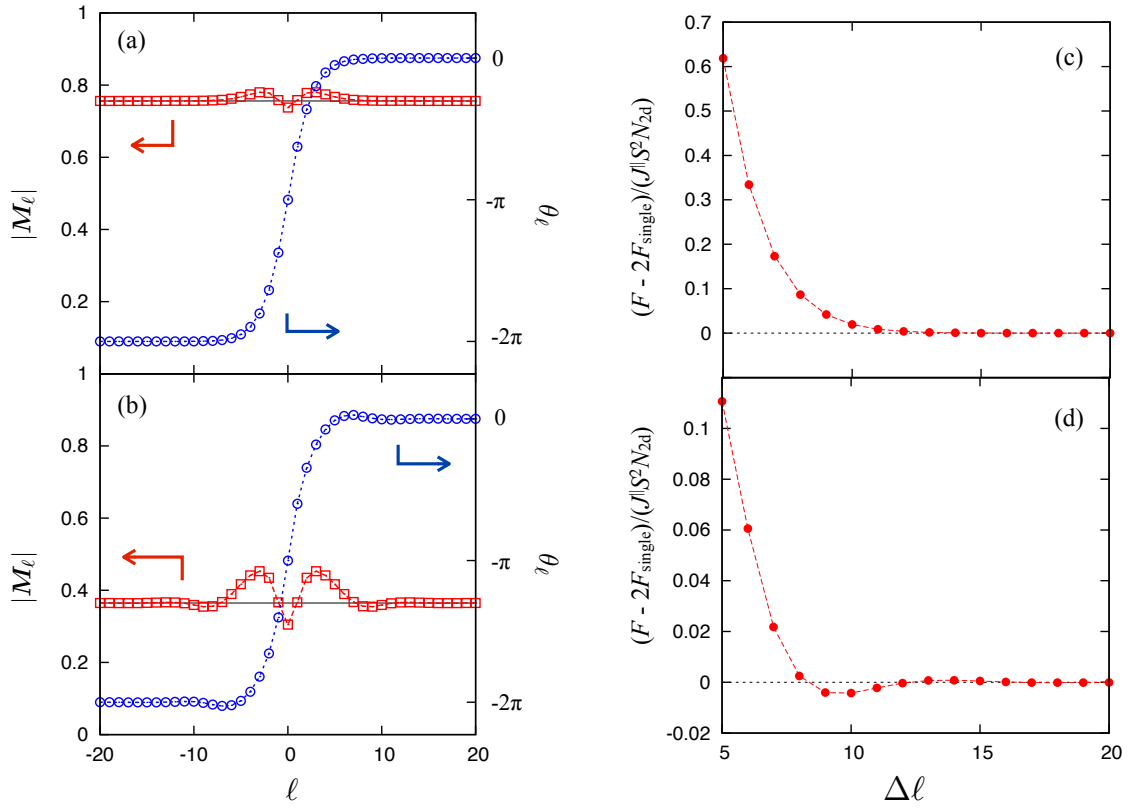


図 3.14: (a) RS 領域における孤立ソリトンの振る舞い。パラメータは $D/J^\parallel = 1$, $J^\perp/J^\parallel = 1$, $T/(J^\parallel S^2) = 1.2$, $H/(J^\parallel S) = 0.375$ 。 (b) AS 領域における孤立ソリトンの振る舞い。 $D/J^\parallel = 1$, $J^\perp/J^\parallel = 1$, $T/(J^\parallel S^2) = 2.0$, $H/(J^\parallel S) = 0.2$ 。 (c) RS 領域において二つのソリトンをおいたとき、それらの距離と自由エネルギーの関係。パラメータは (a) と同じ。 (d) AS 領域における、ソリトン間相互作用。パラメータは (b) と同じ。データは正木祐輔氏より提供。

- κ が実数 $\Rightarrow B^2 - 4AC > 0$ であり、 $\cosh \kappa = \frac{-B \pm \sqrt{B^2 - 4AC}}{2A} > 1$
- κ が虚数 $\Rightarrow B^2 - 4AC > 0$ であり、 $-1 < \frac{-B \pm \sqrt{B^2 - 4AC}}{2A} < 1$
- κ が純虚数 $\Rightarrow B^2 - 4AC < 0$

3.4.2 孤立ソリトンの振る舞いと相転移の種類

孤立ソリトンの典型的な振る舞いとして、図 3.14 に磁気モーメントの大きさ $|M_\ell|$ と角度 θ_ℓ の実空間における振る舞いを示す。図 3.14 (a) は κ が実数となるパラメータにおける孤立ソリトンの振る舞いを示している。ここでは、 θ_ℓ が ℓ に対して単調に増加していく振る舞いが見られる。一方、図 3.14 (b) は κ が有限の実数部を持つ虚数となる領域である。ここでは、振動しながら無限遠の値 (0 または $-\pi$) に収束していく様子が見られる。 κ が純虚数となる領域では、孤立ソリトンは存在せず、らせんを形成する。

図 3.14 (a), (b) と同じパラメータについて、ソリトン間相互作用の大きさをプロットしたものが、図 3.14 (c), (d) である。図 3.14 (c) をみると、すべての領域で、ソリトン間相互作用が斥

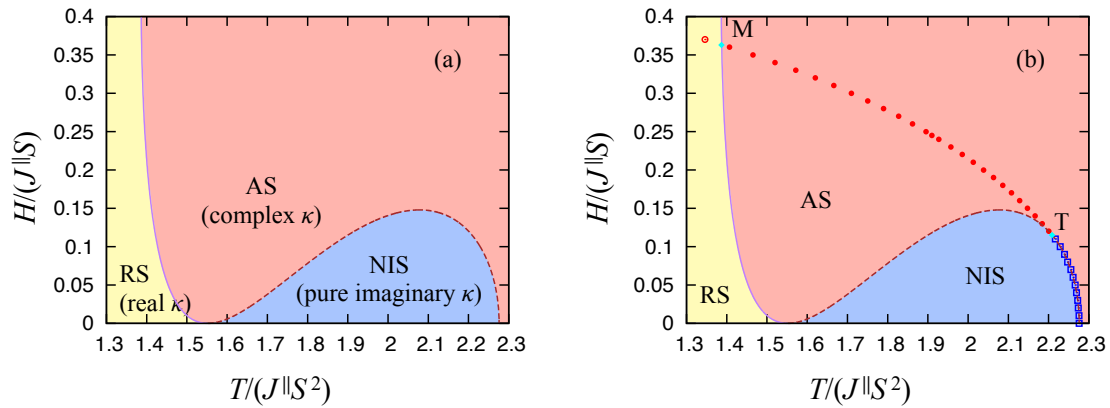


図 3.15: (a) 孤立ソリトンの相図 ($D/J\| = 1, J^{\perp}/J\| = 1$)。斥力相互作用となる孤立ソリトンが存在する領域 (RS) と、引力相互作用となる孤立ソリトンが存在する領域 (AS) のクロスオーバーラインを紫の実線、孤立ソリトンが存在しない領域 (NIS) とのクロスオーバーラインを茶色の実線で示している。(b) (a) の相図に数値計算で求めた相境界を重ね合わせた図。

力となっているのに対し、図 3.14 (d) をみると、引力となる領域が生じている。

図 3.15(a) は、孤立ソリトンの振る舞いの違いによって $H - T$ 相図を以下の 3 つの領域に分けたものを示している。

- RS (Repulsive Soliton): κ が実数であり、孤立ソリトン間の相互作用が斥力となる領域
- AS (Attractive Soliton): κ が有限の実数部を持つ虚数であり、孤立ソリトン間の相互作用が引力となる領域
- NIS (No Isolated Soliton): κ が純虚数であり、孤立ソリトンが存在しない領域

このクロスオーバーラインと、相境界とを重ねてみると (図 3.15(b))、数値精度の範囲内で、これらが交差する点が多重臨界点、接している領域が不安定型の二次転移と一致する。ここから、孤立ソリトンの振る舞いと相転移との間に以下の関係があることが分かる：

- RS 領域の相転移は核生成型の二次転移
- AS 領域の相転移は一次転移
- NIS 領域の相転移は不安定型の二次転移

AS 領域においては、孤立ソリトン間の相互作用が引力となるため、一様相から徐々に磁場や温度を下げていったとき、孤立ソリトンの状態のエネルギーよりも、カイラルソリトン格子状態のエネルギーの方が先に低くなる。これにより、ソリトンが存在しない一様な状態から、カイラルソリトン格子状態に不連続に変化することとなり、相転移は一次転移となると考えられる。

もし引力相互作用を持つソリトンを実験的に捉えられれば、一次転移の存在を証明することができる。スキルミオンに関しては、スキルミオン格子が局在したスキルミオンクラスターの観測によって、引力相互作用を持つスキルミオンが存在することが示唆されている [86,87]。カイラルらせん磁性体についても、ローレンツ電子顕微鏡 (Lorentz transmission electron microscope) などを用いて、図 3.11 のようなソリトン格子が局在した磁気構造が観測されれば、これが引力相互作用を持つソリトンの存在を証明するものとなり、一次転移の存在の間接的な示唆となりうると考えられる。

3.5 h_0 ラインとカイラルファン構造

3.5.1 孤立ソリトンの存在領域

前節の漸近形の解析によって求めた孤立ソリトンの振る舞いは、孤立ソリトン解が存在することを保証するものではない。実際に、平均場近似で、準安定な孤立ソリトン解を用意して安定性を調べると、新たに孤立ソリトンが不安定になるクロスオーバーライン (h_0 ライン [88]) を引くことができる。同様のクロスオーバーラインは MnSi のモデルについても解析されている [88]。

ここで、我々は孤立準安定ソリトン解を次のように解析した。まず、十分低温¹¹において、準安定な孤立ソリトン解を用意する。これは初期状態を $w = 1$ とすることで生成できる。徐々に温度を上げながら¹²平均場方程式を解き、各温度における解を確認した。ある温度において、磁気モーメントの x 成分がすべて正となり、これを準安定孤立ソリトンが不安定になる温度と定義した。いくつかの磁場に対してこれを評価することで、 h_0 ラインを引いた。このプロセスによって、図 3.1 に示す黒△のラインが引かれる。

しかし、これによって得られる h_0 ラインは、過大に評価されたものである。絶対零度において斜め磁場を印加した際の相図を調べると、らせんに平行な磁場が 0 のときのみ h_0 ラインが過大に評価されてしまうことが示されている [89, 90]。これは、平均場近似の範囲内では、らせんの軸上にモーメントが倒れることがないためである。そこで我々は、微小にらせんに平行な磁場 H^{\parallel} を印加し、 $H^{\parallel} \rightarrow 0$ の極限における値を求めることにした。 $D/J^{\parallel} = 0.25, 0.5, 0.75, 1$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 0.25, 0.5, 0.75, 1$ におけるパラメーターでは、 $H^{\parallel}/(J^{\parallel}S) = 10^{-14}$ を印加したときと、 $H^{\parallel}/(J^{\parallel}S) = 10^{-15}$ を印加したときで値が変化しなかったため、 $H^{\parallel}/(J^{\parallel}S) = 10^{-15}$ のときの値を採用し、図 3.1 の黒▲、および図 3.2 の一点鎖線で示す h_0 ラインを得た。

一方、 $D/J^{\parallel} = 0.16$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 8$ におけるパラメーターでは、らせんに平行な磁場を印加した際、緩和が非常に遅くなった。そこで、 1×10^5 , 2×10^5 , 3×10^5 , 4×10^5 , 5×10^5 iteration における値をとり、iteration $\rightarrow \infty$ の漸近形を調べ、その値を採用した。このときの値は、 $H^{\parallel}/(J^{\parallel}S) = 10^{-14}$ のときと、 $H^{\parallel}/(J^{\parallel}S) = 10^{-15}$ のときで値が変化しなかった。これによって図 3.3 の黒▲で表す h_0 ラインを得た。

またここで、注意しておくべきことが二つある。一つに、この計算において我々は周期境界条件を課した。これはつまり、系のシステムサイズと同じ周期でソリトン格子を組んでいることになるが、ソリトン間に働く相互作用が短距離で、システムサイズがそれに比べて十分大きければ、これは孤立ソリトンと見なすことができる。今回の計算ではシステムサイズは $N_z = 400$ サイト ($D/J^{\parallel} = 0.16$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 8$ については 1000 サイト) とした。 $D/J^{\parallel} = 1$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 1$ のパラメーターで、 h_0 ラインを $N_z = 64, 128$ でも調べ、システムサイズ依存性がないことを確認した。もう一つの注意点として、低磁場における NIS 領域は孤立ソリトンが存在しない領域である。ここでは系はらせん構造を呈しているが、やはり磁気モーメントの x 成分がすべて正になる点、という定義で h_0 ラインを評価した。

図 3.2 に、相図と h_0 ラインのパラメーター依存性を示している。特に絶対零度における孤立ソリトンが不安定となる点 ($h_0(T = 0)$ とおく) は、 J^{\perp}/J^{\parallel} に依存しない (図 3.2(a))。DM 相互作用を小さくすると、 $h_0(T = 0)$ と臨界磁場 $H_c^{T=0}$ は、約 2 倍の比を保ちながら低磁場領域に下がっていく (図 3.2(b))。CrNb₃S₆ のパラメーターでは、 $H_c^{T=0}$ が約 2000[Oe] 程度であるため、約 4000[Oe] まで準安定孤立ソリトンが存在しうることが示唆される。

¹¹初期温度は $D/J^{\parallel} = 0.16, J^{\perp}/J^{\parallel} = 8$ のときのみ $T/(J^{\parallel}S^2) = 0.01$ 、他のパラメーターのときは $T/(J^{\parallel}S^2) = 0.001$ とした

¹²温度刻みは $D/J^{\parallel} = 0.16, J^{\perp}/J^{\parallel} = 8$ のときのみ $\delta T/(J^{\parallel}S^2) = 0.01$ とし、他のパラメーターでは $\delta T/(J^{\parallel}S^2) = 0.001$ とした。

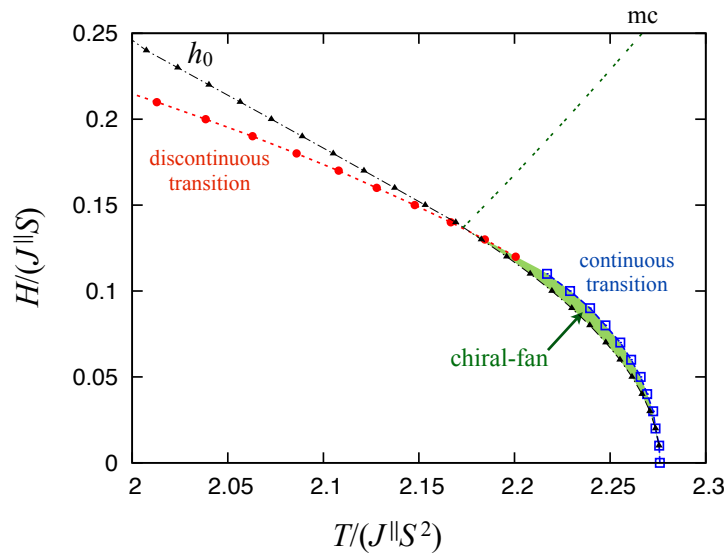


図 3.16: 低磁場の相境界近傍における相図の拡大図。赤●は一次転移、青□は不安定型の二次転移。点線は補助的に引いたもの。黒▲は h_0 ライン (一点鎖線は補助的に引いたもの)、二点線は磁気クロスオーバーライン。 h_0 ラインと相境界の間の緑で塗りつぶされた領域が、最安定解としてカイラルファン構造が実現する領域である。

実験的には、臨界磁場を超えてもソリトンが試料の端に残っている振る舞いが観測されている [Y. Togawa, private commun.]. これは、試料の端で準安定孤立ソリトンが形成されていることを示唆するものである。この残留ソリトンを観測することで、 h_0 ラインを実験的にも引くことができると考えられる。

一方、低磁場の転移温度近傍の h_0 ラインの振る舞いを図 3.16 に示す。ちょうど磁気クロスオーバーラインが相境界と交わるあたりで、 h_0 ラインは相境界と交差する。このとき、 $h_0(T) < H < H_c^T$ の領域では、系はらせん軸方向に周期的に変調する構造を持ち、かつ磁気モーメントの x 成分がすべて正である。この領域における磁気構造を、我々はカイラルファン構造と呼んでいる。この構造は最安定な解としてマクロな系に実現する。

3.5.2 カイラルファン領域近傍における磁気構造の温度変化

ここで、実際に、カイラルファン構造がどのような磁気構造になっているのかを調べる。図 3.17 は、 $D/J^{\parallel} = 1$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 1$, $H/(J^{\parallel}S) = 0.08$ において、転移点近傍の磁気構造の温度変化を調べたものである。左図は、らせんを z 軸上から眺めた図、右図はらせんを横から (y 軸方向から) 眺めた図である。図中の番号はらせん軸上の位置 l を表す。

図 3.17(a), (b) は、 h_0 ラインより低温側の磁気構造である。このとき、らせん軸方向に進むにつれて磁気モーメントは時計回りに回転し、DM 相互作用に対して順方向に巻いている。一方、図 3.17(c) は h_0 ラインよりも高温側の磁気構造を示している。このとき、 $l = 1$ から 6 までは時計回りに回転しているのに対し、 $l = 6$ から 9 では、磁気モーメントの長さを短くして反時計回りに回転している。

図 3.18 は、パラメーターを CrNb_3S_6 と同じ $D/J^{\parallel} = 0.16$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 8$ に設定し、同様に h_0 ライン近傍での磁気構造の温度変化をとったものである。図 3.18 (a), (b) では、らせん軸方向に進

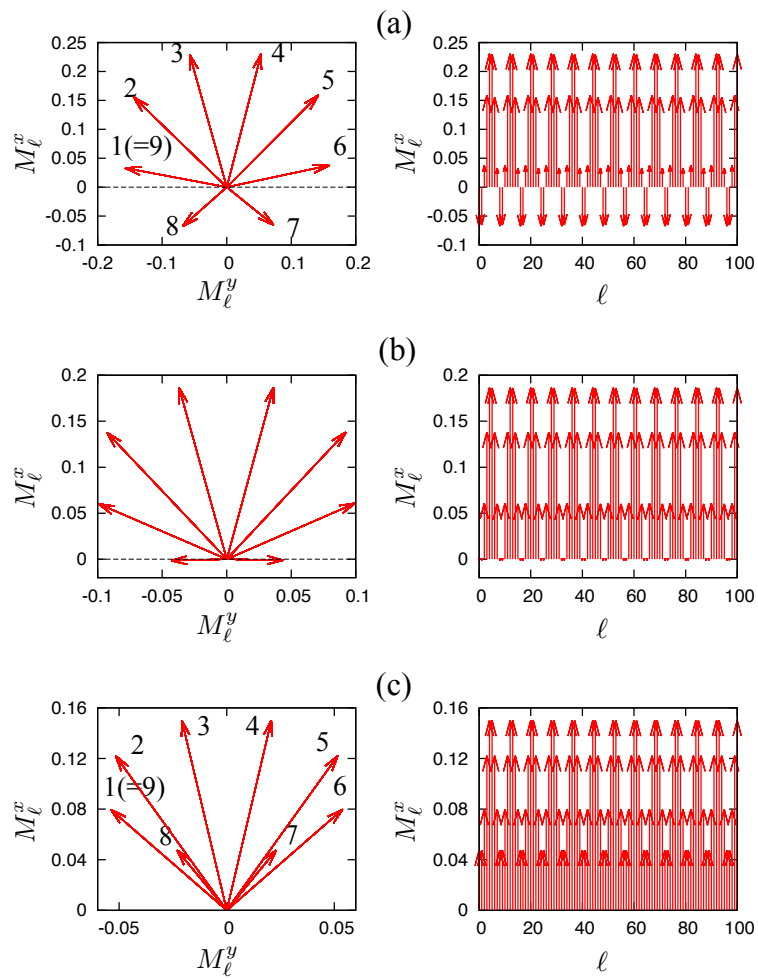


図 3.17: 磁気構造の変化。左図は系をらせん軸方向から (z 軸上で) 眺めた図。右図はらせんを横から (y 軸上で) 眺めた図。パラメーターは $D/J^{\parallel} = 1$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 1$, $H/(J^{\parallel}S) = 0.08$, および (a) $T/(J^{\parallel}S^2) = 2.22$, (b) $T/(J^{\parallel}S^2) = 2.2375$, (c) $T/(J^{\parallel}S^2) = 2.245$ を用いた。ただし、このときの転移温度は $T_c^H/(J^{\parallel}S^2) = 2.276$ である。図中の番号は l の値に相当する。

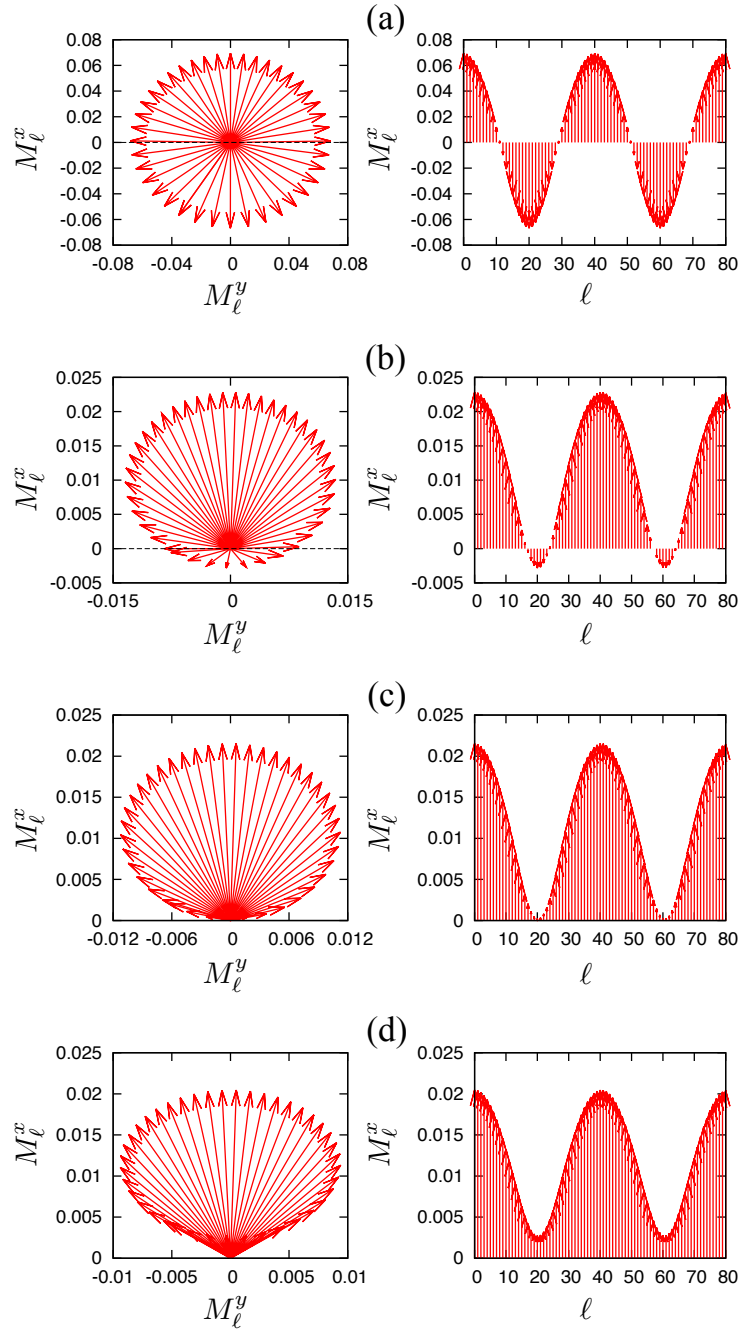


図 3.18: 磁気構造の変化。左図は系をらせん軸方向から (z 軸上で) 眺めた図。右図はらせんを横から (y 軸上で) 眺めた図。パラメータは $D/J^{\parallel} = 0.16$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 8$, $H/(J^{\parallel}S) = 0.08$, および (a) $T/(J^{\parallel}S^2) = 11.31$, (b) $T/(J^{\parallel}S^2) = 11.3391$, (c) $T/(J^{\parallel}S^2) = 11.33925$, (d) $T/(J^{\parallel}S^2) = 11.339315$ を用いた。ただし、このときの転移温度は $T_c^H/(J^{\parallel}S^2) = 11.339317$ である。

むに連れて磁気モーメントは時計回りに回転し、図 3.18 (d) では、磁気モーメントの長さを短くして、反時計回りに回転する領域が存在する。図 3.18 (c) はちょうど h_0 ライン直上の磁気構造で、磁気モーメントの長さが 0 になる点が存在する。

このような不安定型の二次転移近傍では、磁気モーメントを

$$M_\ell^x = \bar{M} + M' \cos(q\ell) \quad (3.5.1)$$

と表すことができる。例えばゼロ磁場では $\bar{M} = 0$ であり、 M' は温度を上げると小さくなっていく。磁場をかけると、 \bar{M} が成長し、 \cos で表される磁気モーメントのカーブが全体的に底上げされた形になる。 $\bar{M} = M'$ となる点が h_0 ラインとして定義され、 $\bar{M} > M'$ となる領域でカイラルファン構造が形成される。

3.5.3 らせん構造とカイラルファン構造

図 3.19 は、らせん構造 (図 3.18 (b)) とカイラルファン構造 (図 3.18 (d)) で、磁気モーメントの振る舞いを比較した図である。図 3.19 (a) は磁気モーメントの長さをらせん軸に沿って調べたものである。磁気モーメントの長さはらせん軸に対して周期的に増減を繰り返す。らせん構造においては、 $-x$ 方向に磁気モーメントが向いているときに磁気モーメントが短くなり、カイラルファン構造においては、磁気モーメントが反時計回りに回転するときに磁気モーメントが短くなる。カイラルファン構造の方が温度が高いために、磁気モーメントは全体的に短くなっている。

一方、図 3.19 (b) は、磁気モーメントの x 軸から測った角度を、らせん軸に沿って調べたものである。らせん構造においては、角度は単調に増加していくのに対し、カイラルファン構造では $|\theta_\ell| < \pi/2$ の範囲で増減を繰り返す。この振る舞いは Schaub, Mukamel らがはじめに示している (参考文献 [45] Fig. 3(b))。 h_0 ライン直上では、磁気モーメントが完全につぶれ、 $|M_\ell| = 0$ となる点が存在する。この点では回転角 θ_ℓ や、ソリトン数 (らせんの巻き数) は定義されない。

図 3.20 は、磁気モーメントの角度と、その微分量の関係を示した図である。らせん構造では周期的な構造が見られるが、カイラルファン構造では逆三角形型の閉じた構造が得られる。

3.5.4 DM エネルギーとゼーマンエネルギーの競合

ここで、らせん構造とカイラルファン構造のエネルギーを定性的に議論する。らせん構造では、磁気モーメントが $+x$ を向いている間 (図 3.17 (a) を参照すると、 $\ell = 1$ から 6 までの間)、その部分は DM 相互作用のエネルギーもゼーマンエネルギーも得している。磁気モーメントが $-x$ 方向を向いている間 (図 3.17 (a) の $\ell = 6$ から 9 までの間) では、DM 相互作用エネルギーは得しているが、ゼーマンエネルギーは損をしている。

一方で、カイラルファン構造では、磁気モーメントが時計回りに回っているとき (図 3.17 (c) の $\ell = 1$ から 6 までの間) は、同じように DM 相互作用エネルギーもゼーマンエネルギーも得しているが、反時計回りに回っているとき (図 3.17 (c) の $\ell = 6$ から 9 までの間) は、DM エネルギーを損し、ゼーマンエネルギーを得している。

DM 相互作用のエネルギーは、磁気モーメントの長さの 2 乗に比例し、ゼーマンエネルギーは磁気モーメントの長さの 1 乗に比例する。温度が高くなり、磁気モーメントが十分に小さくなると、

$$D|M_\ell||M_{\ell+1}| < H|M_\ell| \quad (3.5.2)$$

の関係が成り立ち、DM 相互作用でエネルギーを得するよりも、磁場でエネルギーを得した方が効率が良い。これにより、カイラルファン構造がエネルギー的に安定な構造として存在しうる。

ここで、カイラルファン構造の領域と、帯磁率により求めた磁気クロスオーバーとが関連していることについて少し触れる。磁気クロスオーバーラインは、磁気モーメントの長さに関係して

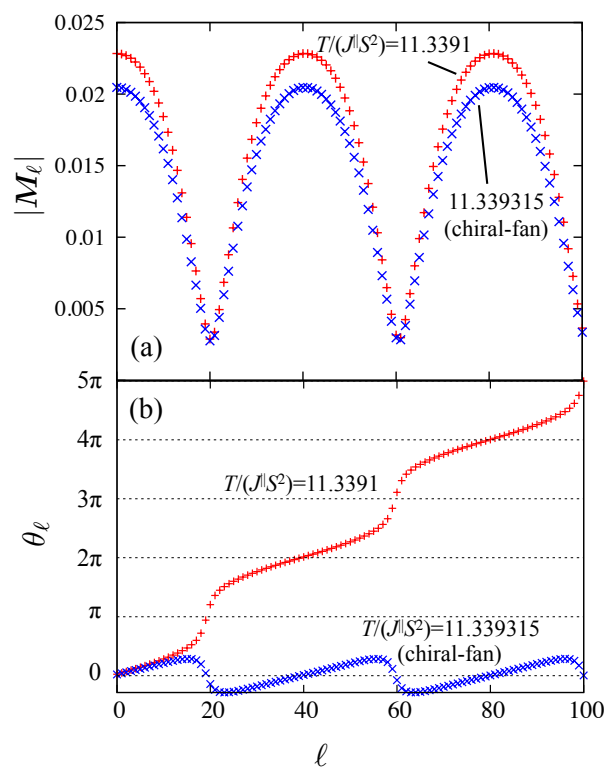


図 3.19: カイラルファン構造とらせん構造との違いを示した図。パラメータは図 3.18(b), (d) と同じである。(a) 磁気モーメントの大きさのサイト依存性。(b) らせんの回転角のサイト依存性。

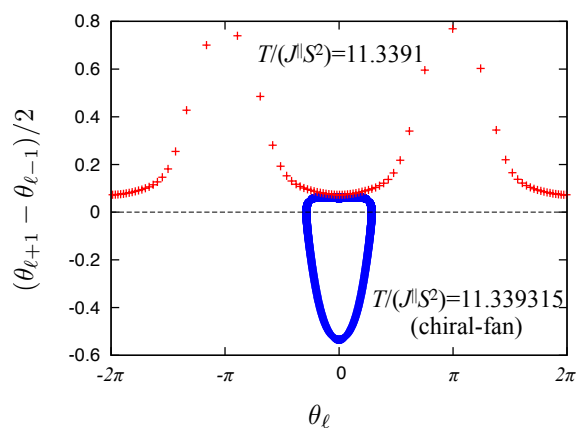


図 3.20: 相軌道 (phase trajectory) と呼ばれる、回転角と回転角の変化量との関係を示した図。パラメータは図 3.18(b), (d) と同じものを用いた。

おり、磁気モーメントの長い高温領域と磁気モーメントの短い低温領域を区別する、一つの目安である。カイラルファン構造は磁気モーメントが十分短くなったときに実現されうる構造であるので、磁気クロスオーバーラインよりも高温側でカイラルファン構造が出現するという結果は妥当である。磁気クロスオーバーラインが相境界と交わる点は、 h_0 ラインが相境界と交差する点と完全に一致する訳ではないが、磁気クロスオーバーを評価することはカイラルファン構造の理解に重要な役割を果たすことが期待される。実験やモンテカルロ計算においては、まだカイラルファン構造の観測には至っていないが、磁気クロスオーバーラインがカイラルファン構造の出現範囲を予想するものとなり、観測のための指標として用いることができると考えられる。

3.6 本章のまとめ

本章では、広い温度・磁場領域における三次元格子系カイラルらせん磁性体の相図を、平均場近似を用いて数値的に解析した。相図のパラメータ依存性を示した上で、計算のしやすい $D/J_{\parallel} = 1$, $J^{\perp}/J_{\parallel} = 1$ のパラメータを用いた解析と、 CrNb_3S_6 のパラメータを用いた解析を平行して行った。

カイラルらせん磁性体の相転移は、核生成型の二次転移、一次転移、不安定型の二次転移の3種類があり、相転移の種類と孤立ソリトンの振る舞いとが関係している [45]。我々は、磁化と比熱を計算し、物理量に現れる特徴的な振る舞いと、それぞれの相転移の種類との関係を示した。また、これらの相境界近傍の振る舞いを数値的な平均場の解析、格子系に拡張した孤立ソリトン解析、および格子系に拡張したランダウ理論を用いた解析の三つの角度から解析し、それらの結果が良く一致することを示した。

我々は一次転移の領域において、カイラルソリトン格子構造と強制強磁性状態とが共存した、界面のある状態の自由エネルギーを評価し、一次転移が観測可能な最小のシステムサイズを評価した。モンテカルロ計算などの熱ゆらぎも含めた数値解析によって一次転移を捉えるためには、一次転移を捉えやすいパラメータとして $D/J_{\parallel} = 1$, $J^{\perp}/J_{\parallel} = 1$ を用いたとしても、らせん軸方向に垂直な二次元平面に少なくとも 10,000 サイト程度必要であることが見積もられた。一方、実験で一次転移を観測するのに必要とされる試料サイズは、現在作成されている試料のサイズに比べて非常に小さく、実際に先行研究の実験で用いられている試料のなかにはこの条件を十分に満たしているものがある。しかし、実験的に物理量の測定やヒステリシスの観測などによって一次転移を捉えることは困難である。その要因としては、(1) 核生成型の二次転移で現れる無限大の傾きなどといった特異性により、一次転移と二次転移を区別することが難しいこと、(2) 準安定領域の狭さ、(3) マクロな一次転移とは別の機構によるヒステリシスの存在 (第 4 章) などが挙げられる。核生成型の相転移の次数を決定するのは、ソリトンの引力・斥力機構であるため、実験的に一次転移の存在を示すには、引力相互作用を持つソリトンの観測が有効であると考えられる。

漸近形の解析で孤立ソリトンの振る舞いが変化するクロスオーバーラインを示したが、すべての温度・磁場領域において孤立ソリトンの存在が保証されているわけではない。実際に、不安定型の二次転移の領域では、秩序相内で孤立ソリトンが定義されなくなる [45]。我々は数値的に、不安定型の二次転移近傍に限らず、相図の全領域で準安定孤立ソリトンの安定性を解析し、 h_0 ラインを定義した。 CrNb_3S_6 のパラメータでは、低温で臨界磁場の倍程度の領域まで準安定孤立ソリトンが存在しうる。実験的に、臨界磁場より高い磁場領域においても、試料の端にソリトンの「切れ端」が残っていることが観測されており [Y. Togawa, private commun.]、このような残留ソリトンを観測することによって、実験的にも h_0 ラインを引くことは可能であると考えられる。

不安定型の二次転移の領域では、 h_0 ラインと相境界に挟まれた領域が存在する。この領域は磁気モーメントが空間的に変調する構造を持つ一方で、らせんの巻き数は0となる。このときの磁気構造を、我々はカイラルファン構造とよび、磁気構造の詳細を明らかにした。カイラルファン構造は、磁気モーメントの長さを変えながら、らせんの右巻きと左巻きが交互に繰り返される。この構造は、温度効果で十分磁気モーメントが短くなったとき、DM相互作用に対して逆巻きの部分における、DM相互作用分のエネルギー損失とゼーマンエネルギーによるエネルギー取得分の大小関係が反転した際に生じる。実験やモンテカルロ計算では、まだこのような磁気構造は確認されていない。実験的に観測するには微分位相コントラストイメージング (differential phase contrast imaging) などを用いて、直接磁気モーメントの長さを測る手法 [14] などが有効であると思われる。

一方、一様相においては、比熱に現れるピーク構造と、帯磁率に現れるピーク構造から、それぞれエントロピークロスオーバー、磁気クロスオーバーを定義した。磁気クロスオーバーは、磁気モーメントの長さの特徴付ける。磁気モーメントが短くなることは、磁気モーメントが不安定型の二次転移の際に必要な小さな秩序変数になりうること、またカイラルファン構造が安定して存在しうる条件に該当する。それゆえ、磁気クロスオーバーは三重臨界点や、カイラルファン構造の理解に重要な役割を果たし、これらが出現する領域と強く関連付けられている。

本研究で得られたカイラルらせん磁性体の相図は、スキルミオンの系の相図と良く似た振る舞いを示している [88]。スキルミオン系は、DM相互作用が多方向にかかる系として理解でき、DM相互作用エネルギーとゼーマンエネルギーとの競合という観点では、今回発見されたカイラルファン構造に対応する磁気構造が、スキルミオン系にも現れても不思議ではない。

さらに本研究成果は、カイラルらせん磁性体に斜め磁場をかけたときの相図の理解の一助となる。絶対零度において、らせんに垂直方向かららせんに平行方向まで連続的に磁場の角度を変えていったときの相図も、同様に2種類の二次転移と、それに挟まれる形で一次転移の領域が存在することが示されている [47]。このモデルで孤立ソリトンの解析を行うと、やはりこれらの相転移の種類と、孤立ソリトンの振る舞いとの関連が示される [89-91]。

一つの系を様々な角度から研究することは、その系における理解が深まるだけでなく、他の系に適用しうる解析手法が増えることにつながる。応用の幅が広がることで、これまで見落とされてきた新奇な現象の発見に結びつくことが期待される。

第4章 準安定状態とヒステリシス

この章では、微小試料のカイラルらせん磁性体の磁化曲線や磁気抵抗曲線において観測されている、ヒステリシスの起源を明らかにする。有限サイズのらせん系においては、らせんの巻き数(ソリトン数)が有限であることが重要な意味を持つ。ソリトン数の変化に伴い、物理量にステップ状の振る舞いが現れることなどが理論的に示されている他 [61,62]、本論文でも 3.2 節において、磁化や比熱に現れる有限サイズ効果を議論した。一方で、微小なカイラルらせん磁性体試料を用いた実験では、明瞭なヒステリシスが現れることが示されている [1,58,60,78]。このヒステリシスは低温における相転移で観測されているが、この領域におけるバルクの相転移は二次転移である。このことから、このヒステリシスが熱力学極限における一次転移に起因するものではなく、他の要因で生成される準安定状態によって生じるものであると考えられている。前章で用いた平均場近似のアルゴリズムでは、各パラメーターで多くの磁気配置を評価し、自由エネルギーが最小となる状態を解として採用した。このような安定状態のみの解析においては、実験で見られるようなヒステリシスを捉えることができない。本章では、系の表面や、磁壁によって作られる多数の準安定状態を調べ、ヒステリシスの出現機構を明らかにする。

4.1 節ではまず絶対零度でらせんの両端において作られるエネルギーバリアを評価する。また、有限温度シミュレーションによって自由エネルギーのソリトン数依存性を調べ、磁場中で現れる多数の準安定状態と、磁化に現れるヒステリシスとの関係を明らかにする。4.2 節では、磁壁が存在する状態を経由してソリトン数を変化させるプロセスを考え、磁壁のエネルギーを評価する。また、磁壁の大きさのパラメーター依存性を評価する。最後に、4.3 節で本章のまとめをする。

4.1 らせんの両端の効果に起因するヒステリシス

本節では、ソリトンがらせんの両端から出入りする過程を考える。らせんの両端におけるエネルギーバリアを解析的に評価するとともに、自由エネルギープロファイルに多数の準安定状態が存在する様子を数値解析によって可視化し、減磁過程におけるヒステリシスの再現を試みる。

4.1.1 系の表面におけるエネルギーバリア¹³

らせんの両端の部分で作られるエネルギーバリアを、一次元カイラルサインゴルドンモデルを用いて評価する。カイラルサインゴルドンモデルのハミルトニアン

$$\mathcal{H} = JS^2 a_0 \int dl \left[\frac{1}{2} (\partial_\ell \phi)^2 - Q_0 \partial_\ell \phi - m^2 \cos \phi \right] \quad (4.1.1)$$

から出発する。ここで、

$$m = \sqrt{\frac{H}{JS^2 a_0}}, \quad Q_0 = \frac{2\pi}{a_0} \arctan(D/J) \quad (4.1.2)$$

¹³この節は加藤雄介氏の計算ノート (未発表, 2017) に基づく。

であり、カイラルサインゴルドン方程式

$$\partial_\ell^2 \phi = m^2 \sin \phi \quad (4.1.3)$$

が満たされる。ここで我々は、系の表面から l_s の距離に孤立ソリトンがある状態を考え、

$$\phi_0(l, l_s) = 4 \arctan(e^{m(\ell-l_s)}) \quad (4.1.4)$$

を考える。この孤立ソリトン系のエネルギーは、強制強磁性状態のエネルギーからソリトンのエネルギーを差し引いたものになるので、

$$E_s(l_s) = JS^2 a_0 \int_0^\infty \left[\frac{1}{2} (\partial_\ell \phi_0)^2 - Q_0 \partial_\ell \phi_0 + m^2 (1 - \cos \phi_0) \right] \quad (4.1.5)$$

となる。これを評価していきたい。

ここで、

$$\partial_\ell \phi_0 = \frac{4me^{m(\ell-l_s)}}{1+e^{2m(\ell-l_s)}} \quad (4.1.6)$$

$$\int (\partial_\ell \phi_0)^2 d\ell = -\frac{8m}{1+e^{2m(\ell-l_s)}} \quad (4.1.7)$$

$$\int \partial_\ell \phi_0 d\ell = 4 \arctan(e^{m(\ell-l_s)}) \quad (4.1.8)$$

$$\int m^2 (1 - \cos \phi_0) d\ell = -4m \frac{1}{e^{2m(\ell-l_s)} + 1} \quad (4.1.9)$$

を用いると、

$$\begin{aligned} E_s(l_s) &= JS^2 a_0 \left[-\frac{4m}{1+e^{2m(\ell-l_s)}} - 4Q_0 \arctan(e^{m(\ell-l_s)}) - 4m \frac{1}{e^{2m(\ell-l_s)} + 1} \right]_0^\infty \\ &= JS^2 a_0 \left[\frac{4m}{1+e^{-2ml_s}} - 4Q_0 \frac{\pi}{2} + 4Q_0 \arctan(e^{-ml_s}) + 4m \frac{1}{e^{-2ml_s} + 1} \right] \\ &= JS^2 a_0 \left[\frac{8me^{2ml_s}}{e^{2ml_s} + 1} - 2\pi Q_0 + 4Q_0 \arctan(e^{-ml_s}) \right] \end{aligned} \quad (4.1.10)$$

ここで

$$m_c = \frac{\pi Q_0}{4} \quad (4.1.11)$$

を定義し、 $X = e^{ml_s}$ とおくと、

$$E_s(X) = 4JS^2 a_0 m_c \left[\frac{m}{m_c} \frac{2X^2}{X^2 + 1} - 2 + \frac{\pi}{4} \arctan\left(\frac{1}{X}\right) \right] \quad (4.1.12)$$

を得る。これをいくつかの磁場についてプロットしたものを、図 4.1(a) に示す。

これを見ると、磁場 (m) が大きいところでは $X = 1$ の所にエネルギーバリアが存在し、小さくしていくと消失する。エネルギーバリアが消失するときの磁場を $m = m_s$ とおくと、

$$E'_s(X)|_{X=1} = 0 \quad (4.1.13)$$

$$\Rightarrow \frac{m_s}{m_c} \left[\frac{4X}{1+X^2} - \frac{4X^3}{(1+X^2)^2} \right] + \frac{4}{\pi} \left(-\frac{1}{1+X^2} \right) \Big|_{X=1} = 0 \quad (4.1.14)$$

$$\Rightarrow \frac{m_s}{m_c} - \frac{2}{\pi} = 0 \quad (4.1.15)$$

$$\Rightarrow m_s = \frac{2}{\pi} m_c \quad (4.1.16)$$

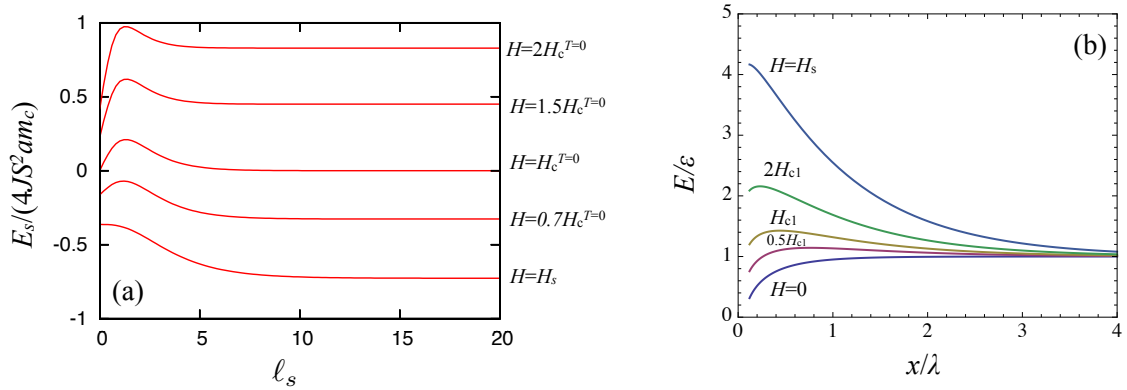


図 4.1: (a) 絶対零度におけるカイラルらせん磁性体の表面近傍のエネルギー。 $D/J^{\parallel} = 0.16$ とした。 (b) 第二種超伝導体の表面近傍のエネルギー

を得る。磁場に直すと

$$H_s = \frac{4}{\pi^2} H_c^{T=0} \simeq 0.405285 H_c^{T=0} \quad (4.1.17)$$

となり、臨界磁場の約 0.4 倍でエネルギーバリアが消失することが分かる¹⁴。

外部磁場と交換相互作用は、試料の表面からソリトンの侵入を阻む斥力として働き、DM 相互作用は逆に引力として働く。これらの競合で系の表面にエネルギーバリアが形成される。

第二種超伝導体における量子渦 (渦糸) に対しても、同様に表面エネルギーの評価がされている (図 4.1(b)) [92, 93]。第二種超伝導体では、下部臨界磁場 H_{c1} と上部臨界磁場 H_{c2} の間に混合状態が存在し、超伝導体内部に侵入した磁束量子が格子を組んだ状態が実現する (渦糸格子: vortex lattice)。低磁場における超伝導状態から徐々に磁場を上げていき、下部臨界磁場に達すると、渦糸が侵入し、混合状態となることが期待されるが、超伝導体表面におけるエネルギーバリアによって、渦糸の侵入が阻害される現象が示されている。このエネルギーバリアは以下のように評価される。 $x > 0$ の半平面を超伝導体が占めている系において、 $x = 0$ 近傍 (表面近傍) に存在する渦糸にかかる力を考える。まず、超伝導体の外側に、反平行な仮想的な渦糸を置き、それとの引力相互作用を考える。仮想渦糸が距離 $2x$ 離れた所に作る磁場は、磁場侵入長 λ 、磁束量子 $\phi_0 = e/(2h)$ 、および 0 次の変形ベッセル関数 K_0 を用いて $(\phi_0/(2\pi\lambda^2))K_0(2x/\lambda)$ と書けるので、仮想渦糸との引力相互作用は

$$E_{\text{imag}} = -\frac{\phi_0^2}{4\pi\mu_0\lambda^2} K_0\left(\frac{2x}{\lambda}\right) \quad (4.1.18)$$

となる。一方で、表面からの磁場の侵入により、表面近くにある渦糸は表面からの斥力を受ける。磁場 $H(x)$ は超伝導表面から離れると指数関数的に減衰する: $H(x) = H(0)e^{-x/\lambda}$ 。ここから、磁場によって表面近傍にある渦糸が受けるエネルギーは

$$E_{\text{field}} = \frac{\phi_0}{\mu_0} H(0)e^{-x/\lambda} \quad (4.1.19)$$

と書ける。以上より、表面近くに渦糸がある状態のエネルギーは、一様な (表面から十分離れた) 超伝導体内に一つ渦糸をおいた状態のエネルギー ϵ と、表面から受ける引力相互作用 E_{imag} 、斥力

¹⁴このことは、カイラルサインゴールドンモデルの解析以前に、格子系の解析計算によって見出された [M. Shinozaki and Y. Masaki (unpublished) (2016)]. 4.1.3 節を参照。

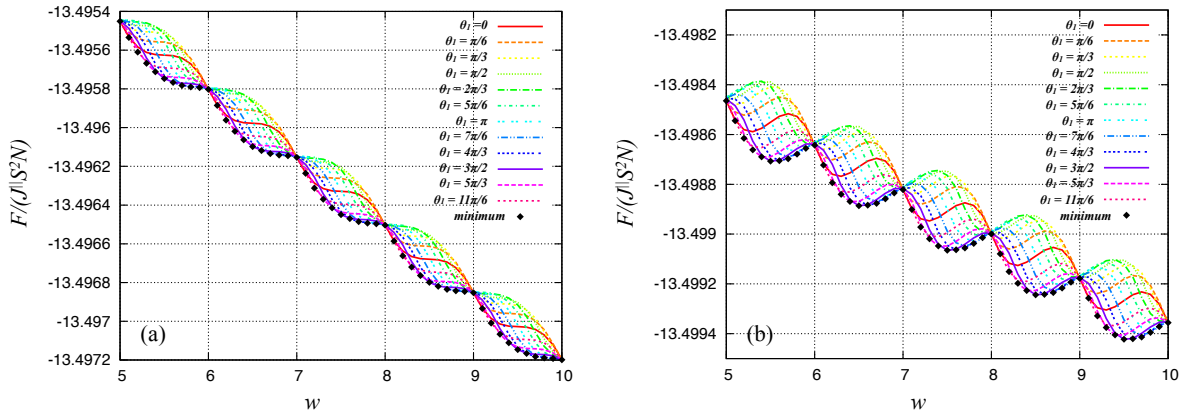


図 4.2: 様々な境界条件を課して求めた自由エネルギーのプロファイル。パラメーターは CrNb_3S_6 と同じ $D/J^\parallel = 0.16$, $J^\perp/J^\parallel = 8$ を用いた。温度は $T/(J^\parallel S^2) = 1$ とした。磁場は (a) $H/H_c^T = 0.4$, (b) $H/H_c^T = 0.667$ である。

相互作用 E_{field} を足し合わせたものとなる：

$$E(x) = \epsilon - \frac{\phi_0^2}{4\pi\mu_0\lambda^2} K_0\left(\frac{2x}{\lambda}\right) + \frac{\phi_0}{\mu_0} H(0)e^{-x/\lambda}. \quad (4.1.20)$$

ここで、

$$\epsilon = \frac{\pi}{\mu_0} \left(\frac{\phi_0}{2\pi\lambda}\right)^2 \log \frac{\lambda}{\xi} = \frac{\phi_0}{\mu_0} H_{c1} \quad (4.1.21)$$

(ξ はコヒーレンス長) である。これは $x \rightarrow 0$ で $E \rightarrow -\infty$ に発散してしまうため、 $x \simeq \xi$ においてカットオフを入れる。図 4.1(b) を見ると、超伝導状態 ($H = 0$) ではエネルギーバリアがなく、磁場をかけていくと表面近傍でエネルギーバリアが成長する。 $H = H_{c1}$ を超えてもエネルギーバリアの影響で渦糸は系内に侵入できず、 $H = H_s = \phi_0/(4\pi\lambda\xi)$ において初めて侵入する。一方で、 $H > H_s$ から減磁する過程を考えると、表面のエネルギーバリアは $H = 0$ まで消失しないため、準安定な混合状態がゼロ磁場まで持続する。

4.1.2 数値計算の手法と自由エネルギーのプロファイル

この節では、固定端境界条件を用いた計算を行い、自由エネルギーのプロファイルに、各ソリトン数に対応した多数の準安定状態が生じることを示す。初期状態としては以下のものを用いる：

$$\mathbf{M}_\ell = S(\cos(k\ell + \theta_1), \sin(k\ell + \theta_1), 0). \quad (4.1.22)$$

ここで、 $k = 2\pi w/N_z$, $w = 0, 0.1, 0.2, \dots, 25.0$ とし、小数の「ソリトン数」を含めて計算を行う。また、 θ_1 は、端の磁気モーメント $\mathbf{M}_{\ell=1}$ の、 x 軸から測った角度である。システムサイズは $N_z = 1000$ とした。

図 4.2 は、 $(T/(J^\parallel S^2), H/(J^\parallel S)) = (1, 0.006)$ および $(1, 0.01)$ において、 $\theta_1 = n\pi/6$, $n = 0, 1, \dots, 11$ についてとった、自由エネルギープロファイルである。各 θ_1 についての自由エネルギープロファイルは、整数の w において一致する。このときの自由エネルギーは、周期境界条件を課して求めたものと同じものである。ある w についての最小の自由エネルギーを、黒いプロット

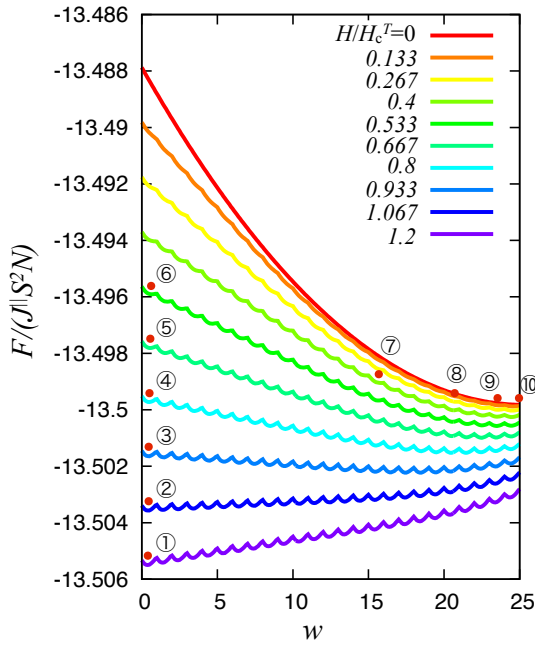


図 4.3: いくつかの磁場について求めた、自由エネルギーのプロファイル。パラメータは図 4.2 と同じものを用いた。赤い「ボール」は、 $H/H_c^T = 1.2$ における解を初期配置とし、自由端境界条件の下で減磁過程を再現したときの、系がとる自由エネルギーの位置である。自由端境界条件では、磁場を $H/H_c^T = 0.533$ まで下げても (①番から⑥番まで) ソリトン数は変化しない (ソリトンは侵入しない)。 $H/H_c^T = 0.4$ (⑦番) のときに、 w が小さいところでの準安定解が消失し、より低い自由エネルギーをもつ新たな準安定状態へと移る。

トで示した。図 4.2 (b) を見ると、黒いプロットで示した自由エネルギープロファイルは、極小値を多数持っており、多くの準安定状態が存在することが分かる。

図 4.3 は、図 4.2 の黒いプロットで示した自由エネルギーに対応するプロファイルを、いくつかの磁場について書いたものである。ゼロ磁場では滑らかなプロファイルになっていて、準安定状態は存在しない。磁場を印加すると、 w に対して F が振動する成分が加わる。この振動成分は系の端の効果によって生じるものであり、その振幅は磁場の大きさに依存する。この振動成分と、無限系の自由エネルギープロファイルとを足したものが、図 4.3 の自由エネルギープロファイルとなる。 $w = 0$ と 1 との間の極小点は、 $H/H_c^T \gtrsim 0.4$ において生じ (または消滅し)、この磁場の値は前セクションで数値的に求めた値 $H_s/H_c^{T=0} = 4/\pi^2$ とほぼ一致する。

H_s の温度依存性を、図 4.4 に示す。図 4.4(a) は、 $D/J_{||} = 1$, $J^{\perp}/J_{||} = 1$ について H_c , H_s および H_s/H_c をプロットしたものである。温度を上げていくと H_s/H_c は徐々に下がっていく。これは、温度によってヒステリシスの幅が相対的に広がることを表している。また、孤立ソリトンが存在しない領域 (NIS 領域) にさしかかると、ソリトンがその領域で存在しないため、端のエネルギーバリアも消失する。これにより、 $T_c^{H=0}$ 近傍では H_s/H_c が急激に上がる振る舞いが見られている。一方で、 CrNb_3S_6 のパラメータ ($D/J_{||} = 0.16$, $J^{\perp}/J_{||} = 8$) にあわせて H_s/H_c の温度依存性を調べると (図 4.4)、 H_s/H_c はほとんど変化しないことが分かる。これは、 H_s と H_c の割合が温度依存性を示すのは多重臨界点の近傍であり、 CrNb_3S_6 のパラメータでは多重臨界点から $T_c^{H=0}$ の領域が非常に小さくなるためである。

図 4.5(a) は、 H_s/H_c の J^{\perp} 依存性を示したものである。 H_c も H_s も、 J^{\perp} に依存しないため、

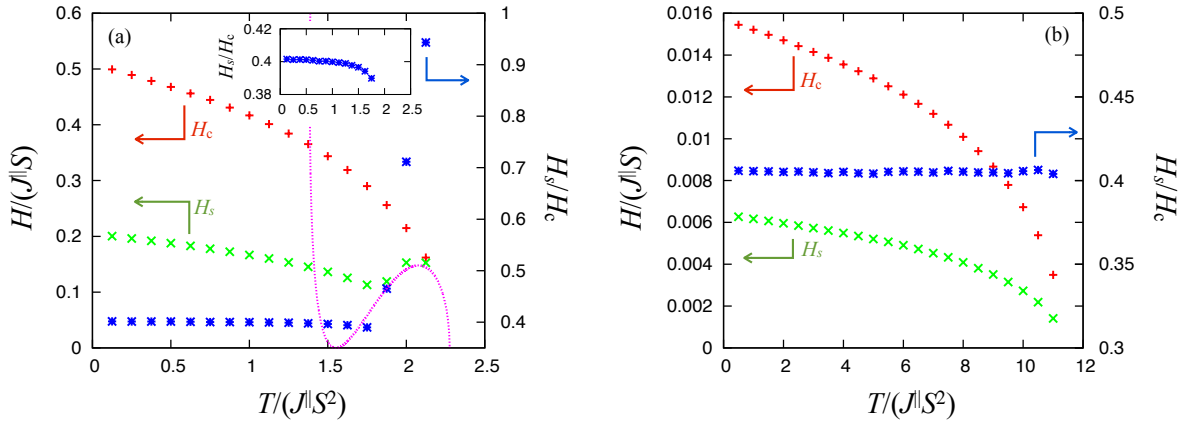


図 4.4: $H - T$ 相図と、 H_s の温度依存性。(a) $D/J^{\parallel} = 1$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 1$ 。挿入図は、 $0.38 < H_s/H_c < 0.42$ の領域の拡大図。 H_s/H_c が、温度に対して有意に減少していく振る舞いが見られる。(b) $D/J^{\parallel} = 0.16$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 8$ 。

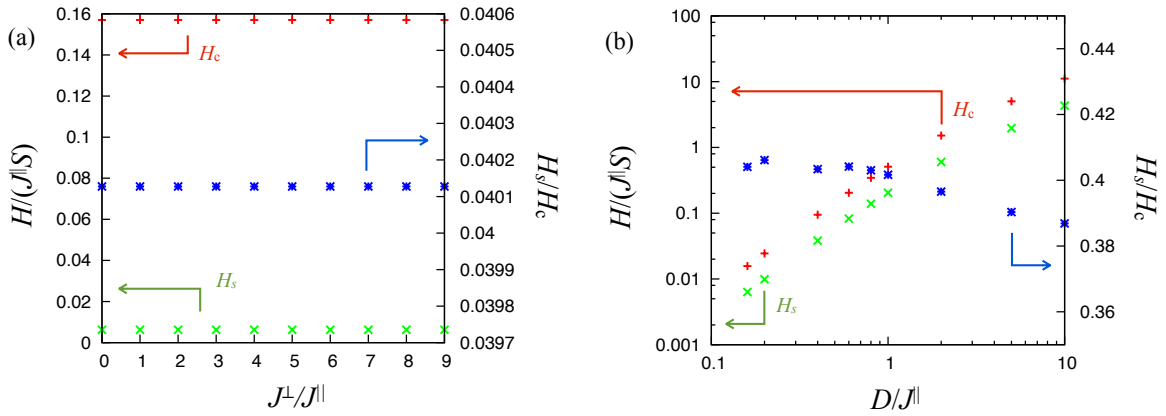


図 4.5: (a) $D/J^{\parallel} = 0.16$, $T = 0$ において、 H_c , H_s , および H_s/H_c の J^{\perp}/J^{\parallel} 依存性を示した図。(b) $J^{\perp}/J^{\parallel} = 8$, $T = 0$ において、 H_c , H_s , および H_s/H_c の DM 相互作用依存性を示した図。

これらの比は J^{\perp} に対して一定である。一方、図 4.5(b) は H_s/H_c の DM 相互作用依存性を示したものである。DM 相互作用が大きいほど(らせんの回転角が大きくなるほど)、 H_s/H_c は小さくなる事が分かる。

4.1.3 減磁過程におけるヒステリシス

ここでは、自由エネルギープロファイルの中に現れる多数の準安定状態が、実験で見られるヒステリシスとどのように関係するのかを調べる。微小な CrNb_3S_6 試料を用いた実験では、増磁過程においてバルクの臨界磁場に近い値で磁化が飽和する様子が見られるが、減磁過程では H_c よりも低い磁場まで磁化が残る。この様子の再現を試みるため、我々は以下の数値計算を行う。まず、初期配置として、 $H_c^T < H < h_0(T)$ における磁場で、ソリトン数の異なるいくつかの解を用意する。ここで、 $h_0(T)$ は、2章で示した h_0 ラインの、ある温度 T における値である。例えば、図 4.6 では、 $D/J^{\parallel} = 0.16$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 8$, $T/(J^{\parallel}S^2) = 1$ を使い、初期配置としては $H/H_c^T = 1.2$ に

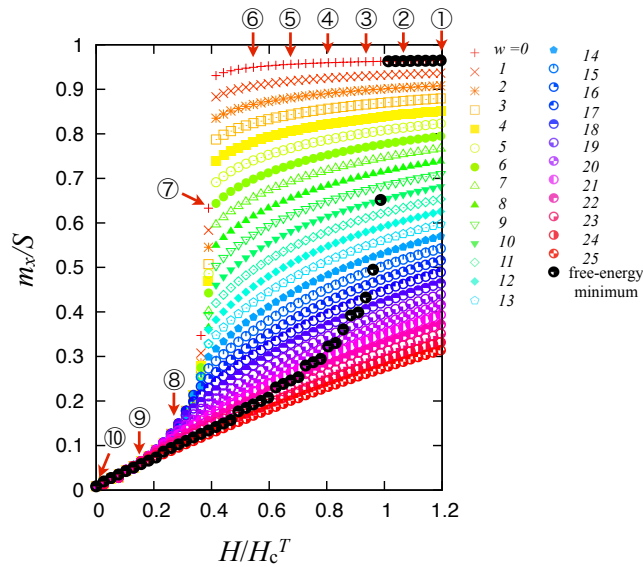


図 4.6: 減磁過程を再現した磁化曲線。高磁場 ($H/H_c^T = 1.2$ において、ソリトン数の異なる初期状態を用意し、その磁気構造から徐々に磁場を下げていったときの磁化過程である。パラメータは $D/J^\parallel = 0.16$, $J^\perp/J^\parallel = 8$, $T/(J^\parallel S^2) = 1$ を用いた。黒いプロットは、各磁場において最小の自由エネルギーを持つ状態の磁化をプロットしたものである。①から⑩の番号は、図 4.3 に振った番号の状態に対応する。

おける解を用いた。またソリトン数は $w = 0$ から 25 までを用意した。この解から出発し、磁気構造を初期化せずに徐々に磁場を下げていく。各磁場では 10,000,000 回、平均場方程式を解いた。

図 4.6 は、上記の数値計算を行った結果、得られた磁化曲線である。カラープロットは、 $H/H_c = 1.2$ において用意した、ソリトン数の異なる解がたどる軌跡を表しており、黒いプロットは各磁場において、自由エネルギーが最小になる状態の磁化をプロットしたものである。

まずは、 $w = 0$ のライン (赤の十字プロット) に着目してみる¹⁵。高磁場側ではソリトンが存在せず、強制強磁性状態である。 H_c よりも磁場を下げて、ソリトンは侵入せず、 $H/H_c^T \simeq 0.4$ で初めてソリトンが侵入する。図 4.3 で示した赤いボールの軌跡がこれに当たる。ソリトンが初めて侵入する磁場 $H/H_c^T \simeq 0.4$ は、4.1.1 節で評価したらせんの端のエネルギーバリアが消失する磁場 H_s とほぼ一致する。ここで注意したいのは、たとえば $H/H_c^T = 0.267$ を見たとき、最低の自由エネルギーまで状態は緩和することなく、途中の準安定状態に「引っかかる」(図 4.3 の⑦番で示したプロットを参照)。 $H = 0$ において初めて、準安定解がすべて消失し、 $m_x = 0$ となる。

同様の振る舞いは、 $w \neq 0$ についての磁化曲線にも見られる。 $H/H_c^T > 0.4$ では、始めにいた準安定状態に引っかかっている。このとき、磁化は徐々に小さくなっていくが、ソリトン数を保存したまま、ソリトンの大きさを大きくすることによって、全体の磁化を下げている (図 4.7)。 $0 < H/H_c^T < 0.4$ で、多くの準安定状態が消失し (w が小さいところにあるエネルギーバリアが消え)、多くの磁化曲線が急激に減少する振る舞いを見せる。 $H = 0$ において、すべての準安定状態が消失し、最安定な磁化がゼロの状態をとる。

あるソリトン数の状態を作ると、磁場を $H_s < H < H_c^T$ の範囲で上下させても、そのソリトン数を保存することができる。実験的にも、このようなソリトン数を保存した磁化曲線 [59] や抵抗

¹⁵ここでいう w とは、式 (2.2.13) で用いた初期磁気配置における w のことである。自由端境界条件を用いているので、終状態におけるソリトン数を $w_f = \sum_\ell \Delta\theta_\ell$ ($\Delta\theta_\ell$ は \mathbf{M}_ℓ と $\mathbf{M}_{\ell+1}$ のなす角) と定義したとき、 w_f は整数値にならない。系の端の効果で磁気モーメントが倒れるからである。

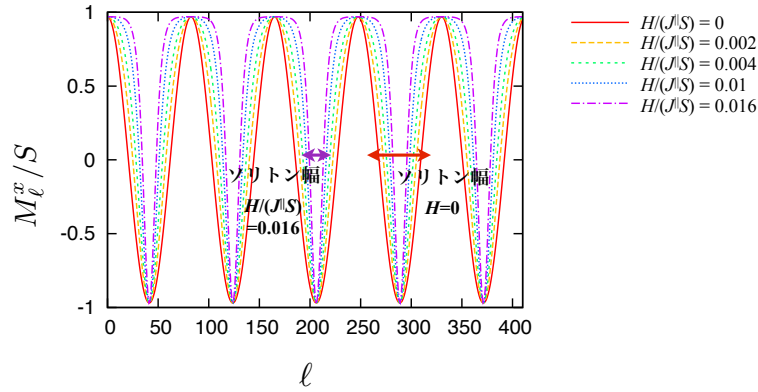


図 4.7: ソリトン数を固定したときの、磁気構造の磁場依存性。ソリトンの大きさを変化させることにより、磁化の大きさを変化させている。パラメータは $D/J^{\parallel} = 0.16$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 8$, $T/(J^{\parallel}S^2) = 1$ を用い、4125 サイト中にソリトンを 50 個用意した。図は 0 から 410 サイトまでプロットしている。

の磁場依存性 (参考文献 [35] Supplement S4) が観測されている。

4.1.4 実験との比較

ここで、数値的に得られた結果と、実験的に観測されているヒステリシスの大きさとの比較を行う。実験結果を解析する際には、反磁場効果によって、実際にかけている磁場よりも、系に有効に働く磁場が弱くなってしまふことを考慮する必要がある。外部磁場の大きさを H_{ex} 、反磁場係数を N_d 、磁化を M とおいたとき、試料にかかる実効的な磁場の大きさ H_{act} が

$$H_{\text{act}} = H_{\text{ex}} - N_d M \quad (4.1.23)$$

となることを仮定する。

ここではまず、実験のデータの評価に際し、増磁過程において磁化が飽和するときの磁場の値 H_{sat} を臨界磁場 H_c に仮定する。また、減磁過程において物理量 (磁化や磁気抵抗) が不連続に変化する際の磁場の値 H_{jump} を、系の表面のエネルギーバリアが消失するときの磁場 H_s に対応させて考える。それぞれの磁場 H_{sat} , H_{jump} において、系の内部で有効に働く磁場の値は、

$$H_c^T = H_{\text{sat}} - N_d M_{\text{sat}}, \quad (4.1.24)$$

$$H_s = H_{\text{jump}} - N_d M_{\text{jump}} \quad (4.1.25)$$

と表せる。ここで、 M_{sat} は飽和時の磁化、 M_{jump} は不連続変化する直前の磁化の値である。システムサイズが十分大きいとき、 M_{sat} と M_{jump} の値はほぼ等しくなる¹⁶。ここで $H_s \simeq 0.4H_c^T$ であることを用いると、

$$0.6H_c^T = H_{\text{sat}} - H_{\text{jump}} \quad (4.1.26)$$

を得、反磁場係数によらない関係式が得られる。

¹⁶ M_{sat} と M_{jump} の違いは、らせんの両端において磁気モーメントが倒れることに起因する (surface twisted state [19, 62, 63])。この効果はらせんの両端のみで起きているため、磁化に及ぼす影響はらせん軸方向のシステムサイズに比例して小さくなる。

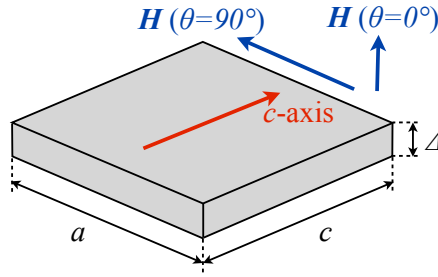


図 4.8: 実験に用いる試料の模式図。試料サイズは、試料 A : $(a, c, \Delta) = (13 \mu\text{m}, 13 \mu\text{m}, 0.5 \mu\text{m})$ 、試料 B : $(a, c, \Delta) = (11.25 \mu\text{m}, 17.5 \mu\text{m}, 0.7 \mu\text{m})$ 、試料 C : $(a, c, \Delta) = (10 \mu\text{m}, 10 \mu\text{m}, 1 \mu\text{m})$ 。

戸川らの実験 [35] (Supplement S1) では、磁場を c 軸に垂直方向に保ったまま、薄膜試料の ab 面内にかかる磁場の角度を変えて、抵抗に現れるヒステリシスの幅を測定している (図 4.8)。この実験で用いた試料を試料 A とする。ここでは $\theta = 0^\circ, 90^\circ$ の結果を評価する。試料の平面に平行に磁場をかけたとき ($\theta = 90^\circ$)、反磁場効果は最も弱くなる。このとき、増磁過程で磁化が飽和するときの磁場の値 $H_{\text{sat}} = 1770 \pm 10$ [Oe] と、減磁過程で磁気抵抗が不連続変化するときの磁場の値 $H_{\text{jump}} = 710 \pm 10$ [Oe] らの比をとると、

$$H_{\text{jump}}/H_{\text{sat}} = 0.401 \pm 0.008 \quad (4.1.27)$$

となり、理論値 $H_s/H_c \simeq 0.4$ とよく一致する。一方、 $\theta = 0^\circ$ のときは反磁場効果が大きいため、 $H_{\text{jump}}/H_{\text{sat}}$ をそのまま評価することはできないが、これらの磁場の値の差を考えると、

$$H_{\text{sat}} - H_{\text{jump}} = 2970 - 1890[\text{Oe}] = 1080[\text{Oe}] \quad (4.1.28)$$

となり、 $\theta = 90^\circ$ のときの値

$$H_{\text{sat}} - H_{\text{jump}} = 1770 - 710[\text{Oe}] = 1060[\text{Oe}] \quad (4.1.29)$$

とよく一致する。

このような実験はいくつかの試料に対して行われている (試料 B, C)。これらの結果を表 4.1 にまとめる。試料 B では、磁場の方向を $\theta = 90^\circ$ に固定し、増磁と減磁を繰り返し測定している。減磁過程における磁気抵抗の不連続性が現れる磁場 H_{jump} は、測定精度の範囲内で変化しないが、磁化が飽和する磁場 H_{sat} の方は測定毎に値にばらつきが生じる。ここでは H_{sat} について、それぞれの測定値を H_{sat}^i ($i = 1, 2, 3, 4, 5$) とおき、平均値 $\bar{H}_{\text{sat}} = \sum_{i=1}^5 H_{\text{sat}}^i / 5$ 、および分散 $\sigma_{\text{sat}} = \sqrt{\sum_{i=1}^5 (H_{\text{sat}}^i - \bar{H}_{\text{sat}})^2 / (5 \times 4)}$ を求めた。これによって $\tilde{H}_{\text{sat}} \equiv \bar{H}_{\text{sat}} \pm \sigma_{\text{sat}} = 1895 \pm 51$ [Oe] を得、 $H_{\text{jump}} = 775 \pm 25$ [Oe] との比が

$$H_{\text{jump}}/\tilde{H}_{\text{sat}} = 0.409 \pm 0.024 \quad (4.1.30)$$

と評価される。

試料 C においても同様に、 $\theta = 90^\circ$ における 3 回の測定結果について、 H_{sat} に対して平均と分散を計算し、 H_{jump} との比を求めると

$$H_{\text{jump}}/\tilde{H}_{\text{sat}} = 0.409 \pm 0.004 \quad (4.1.31)$$

となり、数値結果とよく一致する。また、 $\theta = 90^\circ$ と 0° それぞれにおける $H_{\text{sat}} - H_{\text{jump}}$ の値も、約 15% の誤差の範囲内で結果が一致している。

表 4.1: 実験によるヒステリシスの幅の測定。いずれも温度は 10[K] における測定。データは参考文献 [35]、および青木瑠也氏、戸川欣彦氏より提供。

試料	θ	H_{jump} [Oe]	H_{sat} [Oe]	$H_{\text{sat}} - H_{\text{jump}}$ [Oe]	$H_{\text{jump}}/H_{\text{sat}}$
A	90°	710±10	1770±10	1060±20	0.401±0.008
	0°	1890±10	2970±10	1080±20	—
B	90°	775±25	2025±25	1250±50	0.409±0.024
	90°	775±25	1875±25	1100±50	
	90°	775±25	1725±25	950±50	
	90°	775±25	1975±25	1200±50	
	90°	775±25	1875±25	1100±50	
C	90°	892.5±2.5	2147.5±2.5	1255±5	0.409±0.004
	90°	892.5±2.5	2202.5±2.5	1310±5	
	90°	892.5±2.5	2187.5±2.5	1295±5	
	0°	1967.5±2.5	3082.5±2.5	1115±5	

ここから、ヒステリシスがらせんの両端によって作られるエネルギーバリアに由来することを仮定した解析結果は、実験を良く説明できているといえる。

4.1.5 エネルギーバリアの見積もり

ここで、らせんの両端のエネルギーバリアを評価してみる。例えば $J^{\perp}/J^{\parallel} = 8$, $D/J^{\parallel} = 0.16$, $H/(J^{\parallel}S) = 0.012$, $T_c^H/(J^{\parallel}S^2) = 11.301159$ において、準安定解のエネルギーバリアは

$$\delta F/(J^{\parallel}S^2N_{2d}) = \mathcal{O}(10^{-3}) \quad (4.1.32)$$

程度である。(らせんの長さ N_z にはよらない)。ここで、CrNb₃S₆ のパラメーターを温度に換算すると $J^{\parallel}S^2 \simeq 20$ K [46] であることを用いると、

$$\delta F = \mathcal{O}(10^{-2} \times N_{2d})[\text{K}] \quad (4.1.33)$$

を得る。例えば $N_{2d} = 1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m} \simeq 10^6$ サイト の試料を想定すると、エネルギーバリアは $\delta F = \mathcal{O}(10^4)$ [K] となる。エネルギーバリアはかなり高いため、我々が観測する温度領域 (~ 130 [K]) において、熱エネルギーによってエネルギーバリアを超えるのは不可能である。また、システムサイズ N_{2d} を大きくするほど、エネルギーバリアが高くなるということが分かる。

しかし、以上の結果は実験と矛盾する。まず、実験的にはシステムサイズが小さいほどヒステリシスが顕著になるが、解析結果は逆を示している。また、実験的には増磁過程ではほとんどバルクと同じ臨界磁場で磁化が飽和する。しかし、ゼロ磁場から徐々に磁場を上げていくと、臨界磁場を超えてもソリトン数が保存され、第 3 章 3.5 節で示した h_0 ラインに達したときに初めて、ソリトンが放出される振舞いが見られる。この矛盾は、エネルギーバリアの評価が高すぎることに、また、ソリトンの出入りをらせんの両端からのみに制限していることに起因すると思われる。我々は、ソリトンの出入りをらせんに垂直方向からも許すことにすれば、これらの問題が解決できると考えた。次の節では、磁壁のある状態を中間状態としてソリトン数を変化させる過程を考えることにする。

4.2 磁壁の生成と磁壁の構造

この節では、ソリトン数を変化させる過程として、磁壁を含む状態を考える。まずは、数値的に磁壁の存在する状態を作るための数値計算手法を紹介し、それによって得られる磁壁の構造を調べる。

4.2.1 数値計算の手法

これまででは勝手に垂直な二次元平面を一様として、平均して解いた。しかしここでは、磁壁を含む状態を計算するため、二次元平面の内の各磁気モーメントも個別に計算する。このときの平均場方程式を

$$\mathcal{H}_{i_x, i_y, \ell}^{\text{MF}} = -\mathbf{H}_{i_x, i_y, \ell}^{\text{eff}} \cdot \mathbf{S}_{i_x, i_y, \ell} + C_{i_x, i_y, \ell}, \quad (4.2.1)$$

と表す。ここで、有効磁場

$$\begin{aligned} \mathbf{H}_{i_x, i_y, \ell}^{\text{eff}} = & J^{\parallel} (\mathbf{M}_{i_x, i_y, \ell+1} + \mathbf{M}_{i_x, i_y, \ell-1}) + J^{\perp} (\mathbf{M}_{i_x+1, i_y, \ell} + \mathbf{M}_{i_x-1, i_y, \ell} + \mathbf{M}_{i_x, i_y+1, \ell} + \mathbf{M}_{i_x, i_y-1, \ell}) \\ & + D (\mathbf{M}_{i_x, i_y, \ell+1} - \mathbf{M}_{i_x, i_y, \ell-1}) \times \hat{z} + H \hat{x}, \end{aligned} \quad (4.2.2)$$

定数の項

$$C_{i_x, i_y, \ell} = \frac{\mathbf{H}_{i_x, i_y, \ell}^{\text{eff}} - H \hat{x}}{2} \cdot \mathbf{M}_{i_x, i_y, \ell}, \quad (4.2.3)$$

および、モーメント

$$\frac{\mathbf{M}_{i_x, i_y, \ell}}{S} = \left[\coth(\beta S |\mathbf{H}_{i_x, i_y, \ell}^{\text{eff}}|) - \frac{1}{\beta S |\mathbf{H}_{i_x, i_y, \ell}^{\text{eff}}|} \right] \frac{\mathbf{H}_{i_x, i_y, \ell}^{\text{eff}}}{|\mathbf{H}_{i_x, i_y, \ell}^{\text{eff}}|} \quad (4.2.4)$$

は、 ℓ だけでなく、 i_x, i_y にも依存する。

数値計算のアルゴリズムは以下の通りである。まず、初期磁気配置として、以下のものを用意する (図 4.9)。

$$\begin{aligned} \mathbf{M}_{i_x, i_y, \ell} &= S (\cos k\ell, \sin k\ell, 0) \quad \text{for } 0 < i_y < \eta \\ \mathbf{M}_{i_x, i_y, \ell} &= S (\cos k'\ell, \sin k'\ell, 0) \quad \text{for } \eta < i_y < N_y \end{aligned} \quad (4.2.5)$$

ここで、 $k = 2\pi w/N_z$, $k' = 2\pi(w+1)/N_z$, η は $0 < \eta < N_y$ を満たす整数である。また、系全体でのソリトン数の平均を

$$\bar{w} = \frac{1}{2\pi N_x N_y} \sum_{i_x, i_y, \ell} \Delta\theta_{i_x, i_y, \ell} \quad (4.2.6)$$

と定義する。ここで

$$\begin{aligned} \Delta\theta_{i_x, i_y, \ell} &= \theta_{i_x, i_y, \ell+1} - \theta_{i_x, i_y, \ell} \\ &= \arccos \left[\frac{M_{i_x, i_y, \ell+1}^x M_{i_x, i_y, \ell}^y - M_{i_x, i_y, \ell+1}^y M_{i_x, i_y, \ell}^x}{\sqrt{(M_{i_x, i_y, \ell}^x)^2 + (M_{i_x, i_y, \ell}^y)^2} \sqrt{(M_{i_x, i_y, \ell+1}^x)^2 + (M_{i_x, i_y, \ell+1}^y)^2}} \right] \in [0, \pi] \end{aligned} \quad (4.2.7)$$

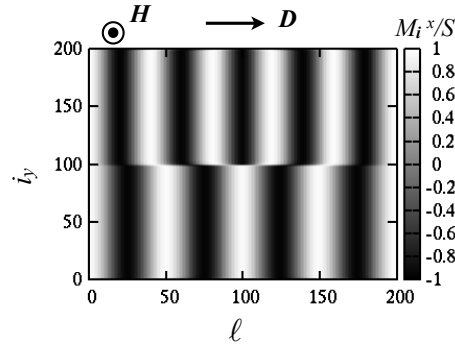


図 4.9: 初期磁気配置。この図では、 $D/J^\parallel = 0.16$, $J^\perp/J^\parallel = 8$, $H/(J^\parallel S) = 0.01$, $T/(J^\parallel S^2) = 1$ とした。また、 $w = 4$, $\eta = [N_z/2]$ ($[x]$ は、 x に等しいか、それ以下の最大整数) を用いた。システムサイズは $(N_x, N_y, N_z) = (5, 200, 200)$ とした。

である。例えば初期磁気配置においては、

$$\bar{w} = \frac{1}{N_y} [\eta w + (N_y - \eta)(w + 1)] \quad (4.2.8)$$

となる。

三次元方向すべてに周期的境界条件を課し、平均場方程式 (4.2.1)-(4.2.4) を自己無撞着に解いていく。すべての i_x, i_y, ℓ について、平均場方程式に基づいて $M_{i_x, i_y, \ell}$ を更新したものを 1 iteration と呼ぶ。適当な iteration 回数ごとに、自由エネルギー

$$\frac{F}{N} = -\frac{1}{\beta N} \sum_{i_x, i_y, \ell} \log \left(\frac{\sinh(\beta S |\mathbf{H}_{i_x, i_y, \ell}^{\text{eff}}|)}{\beta S |\mathbf{H}_{i_x, i_y, \ell}^{\text{eff}}|} \right) + \frac{1}{N} \sum_{\ell} C_{i_x, i_y, \ell}. \quad (4.2.9)$$

を計算する。

我々はこれによって、10,000 iteration 後の磁気配置として図 4.10 を得た。図 4.10 (a) を見ると、 $(i_y, \ell) \simeq (100, 100)$ および $(200, 100)$ 近傍の二点でソリトンが途切れている¹⁷。この二点は平均場の iteration プロセスを進めるごとに徐々に近づいていき、消失する。 $\ell = 98, 99, \dots, 103$ において、 M_i^x , M_i^y , M_i^z の i_y 依存性を調べたものが、それぞれ図 4.10 (b), (c), (d) である。磁気モーメントは $\ell = 100$ と $\ell = 101$ で逆向きに回転しており、またすべての場所において、 $M_i^z = 0$ となっている。

ソリトンが途切れる位置では、隣り合う ($\ell = 100$ と 101 における) 磁気モーメントが逆方向を向いており、このような構造を実際の試料で実現することは困難であると思われる。このような磁気配置が出現した原因は、平均場近似によってらせん軸 (z 軸) 上に磁気モーメントが向くことがないためである¹⁸。らせん軸に垂直な xy 平面を考えたとき、この平面は z 軸方向に対して完全に対称であるため、 z 軸方向にモーメントが倒れる可能性がこの計算の中で自然に排除されてしまっている。このため、 z 軸方向の不安定性を検知することができない。より現実に近い磁気構造を生成したいと考えたとき、 z 軸方向の対称性を崩すような成分を加えることが必要となる。

我々はより現実に近い磁気構造を得るために、らせん軸方向に磁場 H^\parallel を微小に印加することとした。このとき、オンサイトの異方性の効果も取り入れることにし、以下のハミルトニアン

¹⁷ この途切れた点は、 z 軸方向に対して不連続であり、磁壁とは呼べない。

¹⁸ これは 3.5 節において h_0 ラインが過大評価されてしまった理由と同じである。

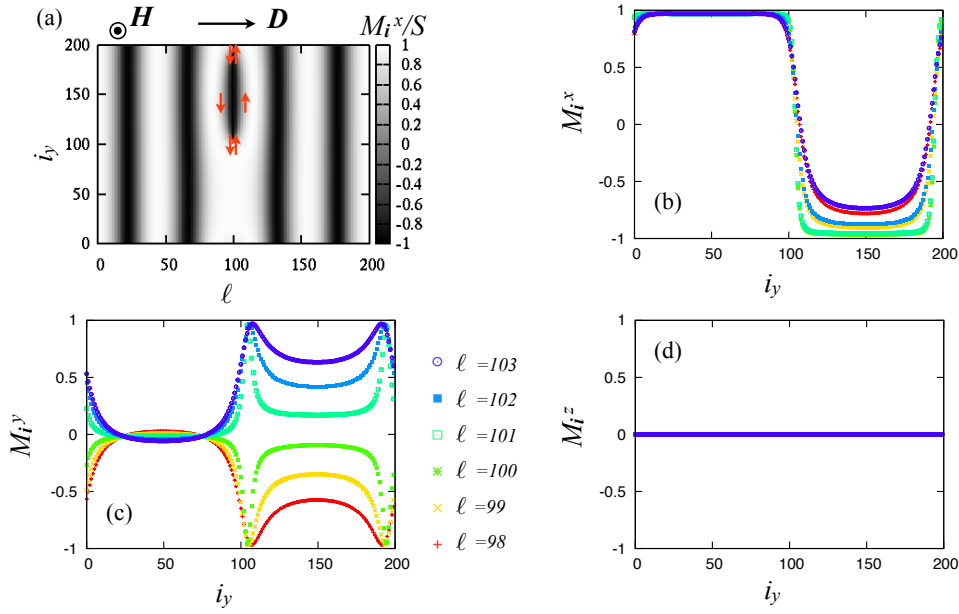


図 4.10: 図 4.9 の状態から 10,000 iteration 後の磁気配置。(a) 全体図。赤い矢印は磁壁周辺における局在磁気モーメントの向きを表している。(b), (c), (d) 磁壁の中心近傍 ($l = 98, 99, \dots, 103$) における磁気構造。(b) M_i^x の i_y 依存性、(c) M_i^y の i_y 依存性。(d) M_i^z の i_y 依存性。

もとで計算を行う：

$$\begin{aligned} \mathcal{H} = & -J^\perp \sum_i \mathbf{S}_i \cdot (\mathbf{S}_{i+\hat{x}} + \mathbf{S}_{i+\hat{y}}) - J^\parallel \sum_i \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_{i+\hat{z}} - D \sum_i (\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_{i+\hat{z}}) \cdot \hat{z} \\ & + K \sum_i (S_i^z)^2 - H \sum_i \mathbf{S}_i \cdot \hat{x} - H^\parallel \sum_i \mathbf{S}_i \cdot \hat{z}. \end{aligned} \quad (4.2.10)$$

ここで、らせん軸方向に磁場をかけたときの臨界磁場 H_c^\parallel は、絶対零度において

$$H_c^\parallel / (J^\parallel S) = 2 \left[\sqrt{1 + (D/J^\parallel)^2} - 1 \right] + K/J^\parallel \equiv K_{\text{eff}}/J^\parallel \quad (4.2.11)$$

と書ける [94]。これと実験的に測定された臨界磁場の値 (約 20 kOe [31]) とを比較すると、CrNb₃S₆ ではオンサイトの異方性エネルギーが $K/J^\parallel = 0.1$ 程度になることが分かる。以下では、オンサイトの異方性エネルギーとらせん軸方向にかけられる磁場の値を、それぞれ $K/J^\parallel = 0.1$ および $H^\parallel / (J^\parallel S) = 10^{-14}$ に設定する。

このハミルトニアンを用いて、改めて図 4.9 を初期磁気配置として平均場の iteration プロセスを行うと、10,000 iteration 後の磁気構造として図 4.11 を得る。図 4.11 (a) を見ると、 $(i_y, l) \simeq (100, 100)$ および $(200, 100)$ 近傍の二点で磁壁が生成されている¹⁹。 $l = 98, 99, \dots, 104$ において、 M_i^x 、 M_i^y 、 M_i^z の i_y 依存性を調べたものが、それぞれ図 4.11 (b), (c), (d) である。磁壁の中心ではらせん軸方向に磁気モーメントが傾く。二つの磁壁中心において、磁気モーメントが傾く方向 M_i^z は同じである。平均場の iteration プロセスを進めるごとにこれらの磁壁は徐々に近づいていき、最後には対消滅する。

¹⁹この図で、奥行き方向 (x 軸方向) にも全く同じ構造が生成されている。

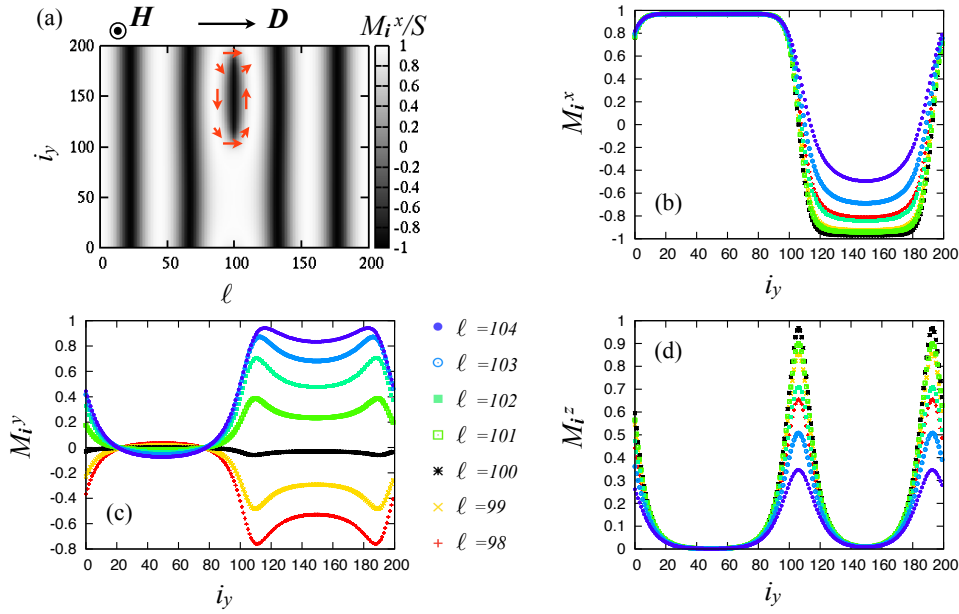


図 4.11: 図 4.9 の状態から、ハミルトニアン (4.2.10) 式のもとで 10,000 iteration 行った後の磁気配置。(a) 全体図。赤い矢印は磁壁周辺における局在磁気モーメントの向きを表している。(b), (c), (d) 磁壁の中心近傍 ($\ell = 98, 99, \dots, 104$) における磁気構造。(b) M_i^x の i_y 依存性、(c) M_i^y の i_y 依存性。(d) M_i^z の i_y 依存性。

4.2.2 磁壁の生成・消滅

図 4.12 に、自由エネルギーのプロファイルと、平均場の iteration プロセスの途中の状態の磁気構造を示す。100 iteration における磁気構造 (図 4.12(b)) を取り出してみると、ソリトンが歪んでいるが、すでに磁壁は生成されているのが分かる。10,000 iteration (図 4.12(c)) になると、ソリトンのゆがみが無くなり、磁気構造も自由エネルギーも、ここから約 70,000 iteration までほとんど変化しない。二カ所に生成された磁壁は徐々に接近し、はじめ $w = 4.5$ であったソリトン数は $w = 4$ に近づいていく。77,700 iteration (図 4.12(i)) から 77,900 iteration (図 4.12(k)) において、二つの磁壁の対消滅が起こり、80,000 iteration (図 4.12(l)) では磁壁は完全に消滅している。さらに iteration プロセスを踏むと、残った 4 つのソリトンを等間隔になるように調整が行われ、安定 (もしくは準安定²⁰) な 4 ソリトンの状態になる。

対消滅の際の磁気構造の詳細を示したのが、図 4.13 である。ここでは 77,000 iteration, 77,700 iteration, 77,800 iteration, 77,900 iteration, 80,000 iteration のそれぞれについて、磁壁の存在する $\ell = 100$ における磁気構造を y 軸方向に沿って示している。磁壁は z 軸方向に磁気モーメントが向くことによって、生成・消滅が起こる。ここでは iteration プロセスを逆まわしにして、磁壁の生成過程について考えてみる。まず、80,000 iteration においては磁壁は存在せず、 M_i^x , M_i^y , M_i^z はいずれも i_y に対して一定で、 M_i^x のみ値を持っている。77,900 iteration における構造を見ると、 $i_y \simeq 150$ 近傍で磁気モーメントが z 軸方向に倒れ、77,000 iteration においては M_i^z にダブルピークの構造が見られる。これらの二つのピークが徐々に離れていき、70,000 iteration においては $i_y \simeq 120, 180$ の二点において磁壁が生成されている。

²⁰ $\bar{w} = 4.5$ の初期配置から始めた iteration プロセスでは、最終的に $\bar{w} = 4$ か $\bar{w} = 5$ の状態のいずれかに収束し、これら以外の解 (例えば $\bar{w} = 3$) が最安定の解であったとしても、その解に到達することは無い。

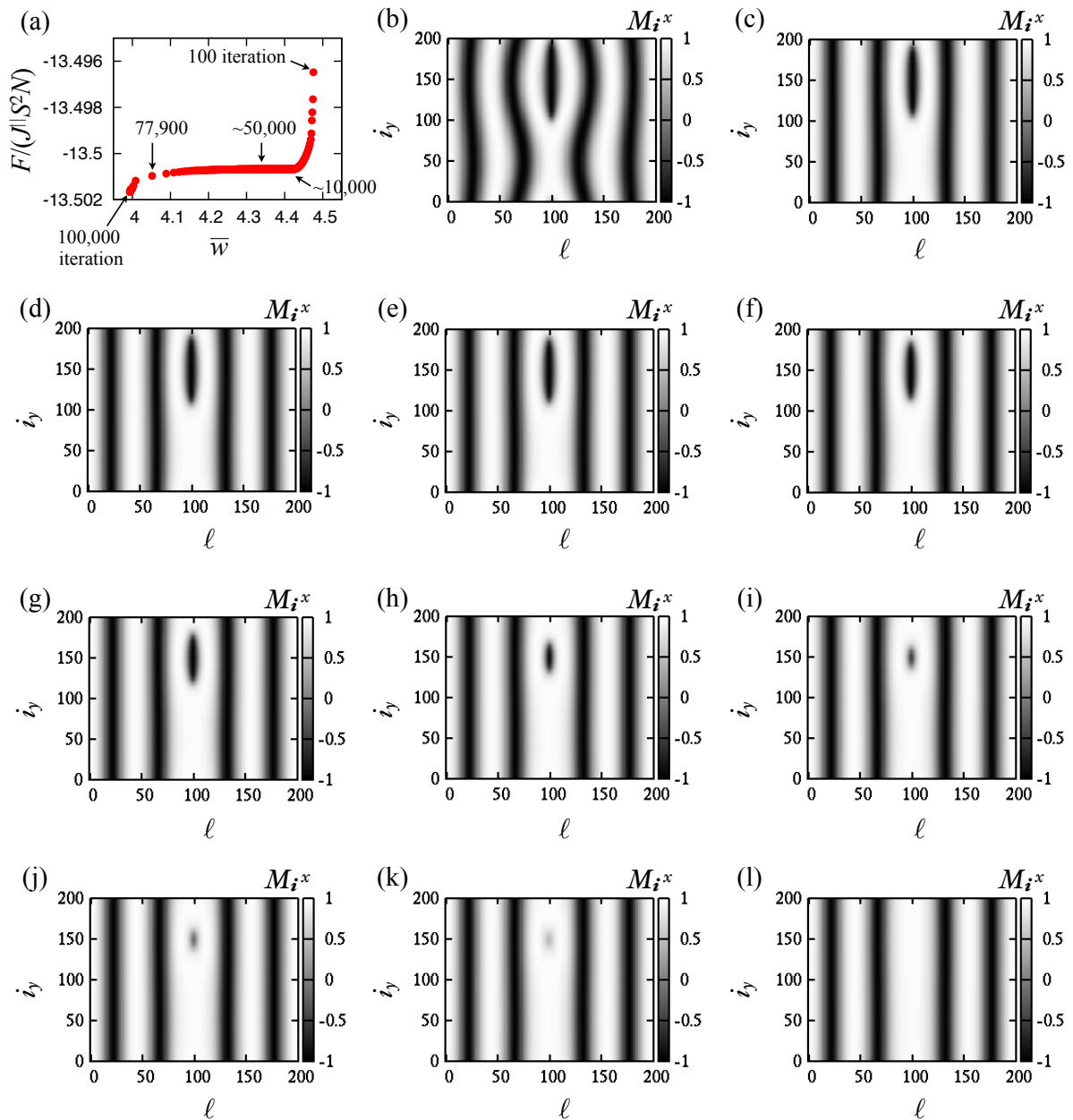


図 4.12: (a) 自由エネルギーのソリトン数依存性。パラメーターは $D/J^{\parallel} = 0.16$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 8$, $H/(J^{\parallel}S) = 0.01$, $T/(J^{\parallel}S^2) = 1$ を用い、初期配置として $w = 4$, $\eta = [N_z/2]$ を用意した。システムサイズは $(N_x, N_y, N_z) = (5, 200, 200)$ とした。(b) 100 iteration, (c) 10,000 iteration, (d) 20,000 iteration, (e) 40,000 iteration, (f) 60,000 iteration, (g) 70,000 iteration, (h) 77,000 iteration, (i) 77,700 iteration, (j) 77,800 iteration, (k) 77,900 iteration, (l) 80,000 iteration 後のそれぞれの磁気構造。

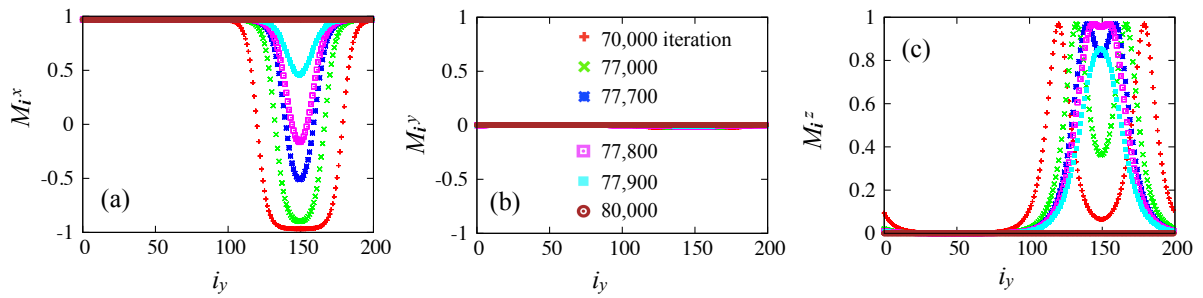


図 4.13: 図 4.12 の (g) から (l) についての磁気構造の詳細。 $\ell = 100$ における (a) M_i^x , (b) M_i^y , (c) M_i^z の i_y 依存性を調べたもの。

この磁壁の生成・消滅過程は連続的であり、実際には熱ゆらぎなどによって磁壁の「種」(77,900 iteration における $i_y \simeq 150$ 近傍の構造) が作られると考えられる。ここから磁壁を生成し、磁壁のペアがそれぞれ $\pm y$ 方向に移動していくことによって、ソリトン数を増減させることができる。

4.2.3 磁壁の大きさ

ここで、磁壁の大きさのパラメータ依存性を評価する。我々は、磁壁の大きさを図 4.14 に示すような方法で測定した。図 4.14(b) は磁壁中心を通る ℓ について (図 4.11(b) の $\ell = 100$)、磁壁の部分 ($i_y = 100$ 近傍) を拡大したものである。磁壁の中心における i_y の近傍において接線を引き、それが M_i^x の漸近値と交差する点を求める。二つの点の距離 Δy を磁壁の大きさと定義する。

図 4.15(a) は、 $D/J^{\parallel} = 0.16$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 8$, $T/(J^{\parallel}S^2) = 1$, $H/(J^{\parallel}S) = 0.01$, $(N_x, N_y, N_z) = (5, 200, 200)$ 、および初期配置として $w = 4$, $\eta = [N_y/2]$ を用意したとき、1,000 iteration ごとの磁壁の大きさを測定したものである。Iteration を踏んでいくと、磁壁は位置を i_y 方向に移動していくが、大きさには変化がないことが分かる。以後、磁壁の大きさを測定する際は、2,000 iteration 後の磁気構造について調べることにする。2,000 iteration と、iteration 回数を少なくするのは、iteration を踏むことによって磁壁が消失してしまう前に、計算を止めるためである。

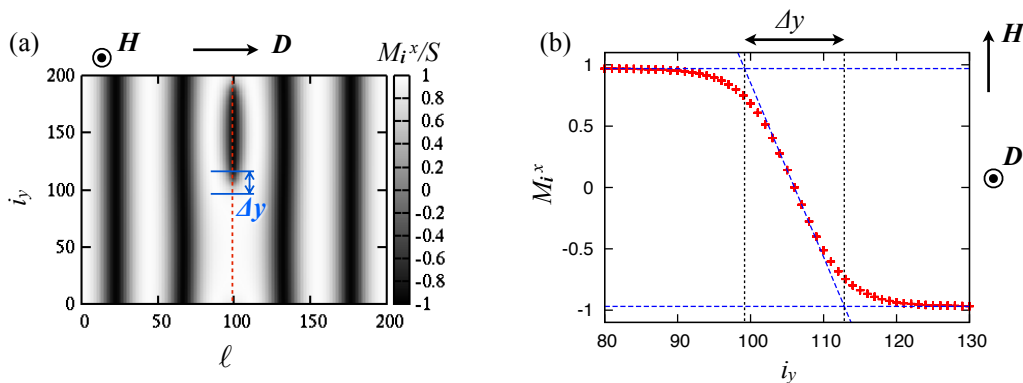


図 4.14: 磁壁の大きさの評価。(a) 系の全体像。(b) $M_{i=100}^x$ の i_y 依存性をプロットしたもの。磁壁の近傍を拡大している。磁壁の大きさは、磁壁中心における接線と、磁壁から十分離れた位置 (ここでは $i_y = 50, 150$ 近傍) における接線らとの交点の距離を測ることによって求める。

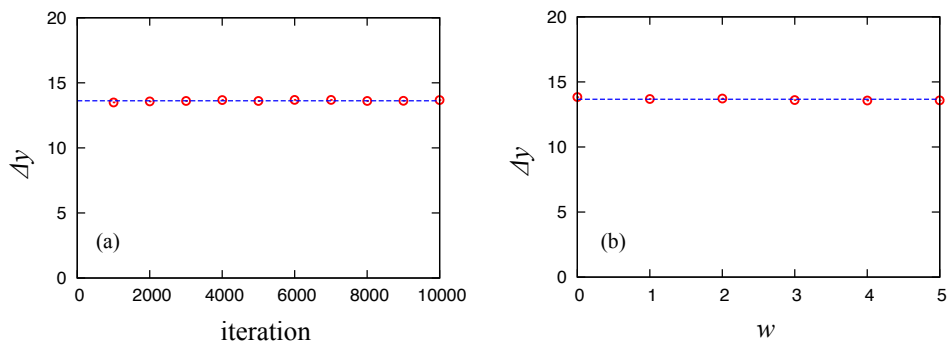


図 4.15: (a) 磁壁の大きさの iteration 依存性。(b) 磁壁の大きさの w 依存性。

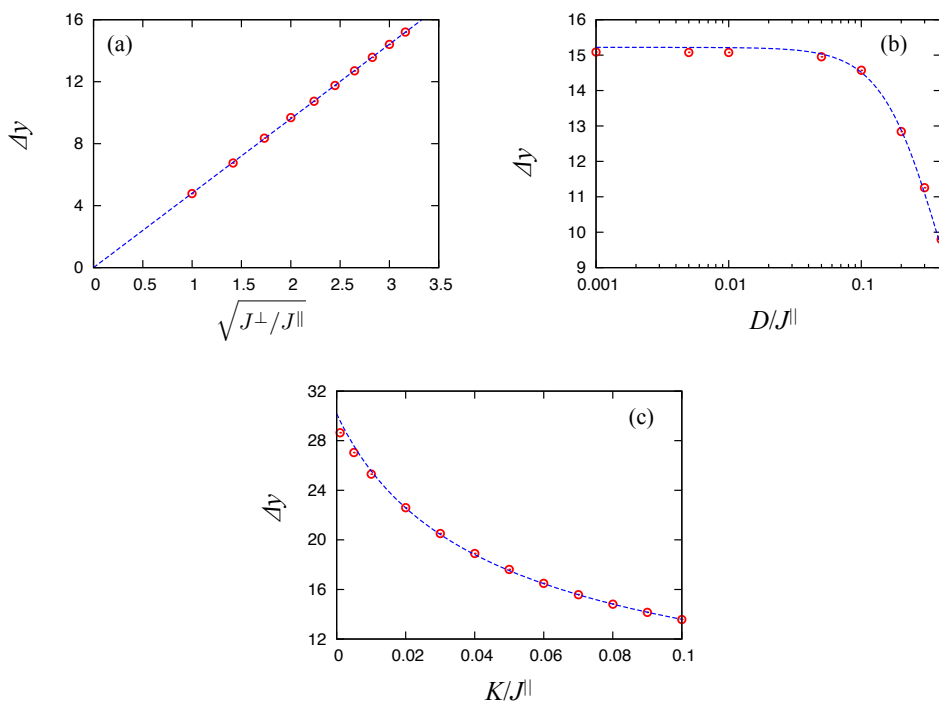


図 4.16: 磁壁の大きさの (a) J^\perp/J^\parallel 依存性、(b) DM 相互作用依存性、(c) 異方性の大きさ (K) 依存性。それぞれ、変化させるパラメーター以外のパラメーターは、 $D/J^\parallel = 0.16$, $K/J^\parallel = 0.1$, $J^\perp/J^\parallel = 8$ に設定し、2000 iteration 後の磁気構造から大きさを見積もった。磁場と温度は $H/(J^\parallel S) = 0.01$, $H^\parallel/(J^\parallel S) = 10^{-14}$, $T/(J^\parallel S^2) = 0.1$ とした。図 4.15(b) より、 w 依存性はないため、2000 iteration 後に磁壁が消失しない w を適宜設定した。

図 4.15(b) は、同じパラメーターで、初期配置として $\eta = [N_y/2]$, および $w = 1, 2, 3, 4, 5$ を用意し、磁壁の大きさの w 依存性を見たものである。磁壁の大きさはソリトン密度に依存しないことが分かる。

図 4.16, 4.17 は、磁壁の大きさのパラメーター依存性を評価したものである。図 4.16 に示すように、磁壁の大きさは $\sqrt{J^\perp/J^\parallel}$ に比例し、DM 相互作用やオンサイトの異方性を大きくするほど磁壁は小さくなる。

ここで、強磁性体における 180° 磁壁を考えてみると、磁壁の厚さは $\sqrt{J/K}$ に比例し [95]、交

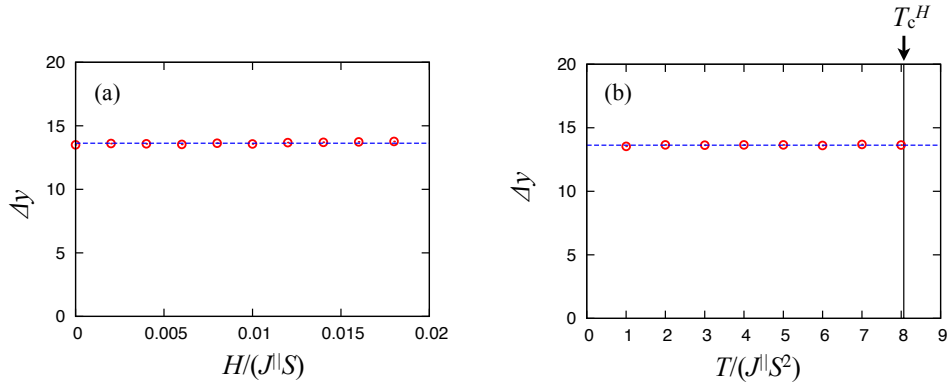


図 4.17: 磁壁の大きさの (a) 磁場依存性、(b) 温度依存性。パラメータは $D/J^{\parallel} = 0.16$, $K/J^{\parallel} = 0.1$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 8$, $H^{\parallel}/(J^{\parallel}S) = 10^{-14}$ を用い、(a) では $T/(J^{\parallel}S^2) = 0.1$ 、(b) では $H/(J^{\parallel}S) = 0.01$ に設定した。

換相互作用 J が大きいほど磁壁は厚くなり、異方性 K が大きいほど磁壁は薄くなる。今回は、異方性 K に加えて、DM 相互作用も z 軸を困難軸とする働きをしている。式 (4.2.11) で定義した K_{eff} を用いて、磁壁の大きさが

$$\Delta y \propto \sqrt{\frac{J^{\perp}}{K_{\text{eff}}}} \quad (4.2.12)$$

となると仮定し、フィッティングを行った。まず図 4.16(a) において、フィッティングを行い、比例係数として 1.701 ± 0.002 を得た。ここから磁壁の大きさの関数として

$$\Delta y \simeq 1.7 \sqrt{\frac{J^{\perp}/J^{\parallel}}{2(\sqrt{1 + (D/J^{\parallel})^2} - 1) + K/J^{\parallel}}} \quad (4.2.13)$$

となることが示唆される。この関数を図 4.16(b), (c) の中でプロットすると、DM 相互作用依存性も K 依存性もよく一致し、磁壁の大きさのパラメータ依存性がこの関係式でよく記述できることが分かる。

一方、図 4.17 に示すように、磁壁の大きさは磁場、温度には依存しない。CrNb₃S₆ のパラメータで磁壁の大きさを測ると、 Δy は約 14 サイトである。CrNb₃S₆ の ab 面の格子定数は 5.75 Å であるから [31]、実際の磁壁は 8 nm 程度の大きさになると評価される。

4.2.4 磁壁のエネルギー

ここでは磁壁が作るエネルギーを計算し、このような磁壁を生成する過程を経てソリトン数を変化させるときの、エネルギーバリアを評価する。図 4.18 は、以下の計算を行ったときの、100 iteration ごとの自由エネルギーをプロットしたものである：初期状態として、 $w = 0$ から 5 までの整数を用意し、それぞれの w に対して $\eta = [N_y/10], [N_y/5], [N_y/3], [N_y/2], [2N_y/3], [4N_y/5], [9N_y/10]$ を用意した。ここで、システムサイズは $(N_x, N_y, N_z) = (5, 200, 200)$ とした。100 iteration ごとに自由エネルギーを計算し、最大で 100,000 iteration 行った。

Iteration を踏むごとに、自由エネルギーは低くなっていく。このときの緩和時間は、はじめの頃 (10,000 iteration くらいまで) は早いですが、その後非常に緩やかなものになる。図 4.18 をみると、どの初期状態から始めたものも、最終的には整数の \bar{w} に収束していくが、収束しきる前に、何ら

かのバリアの上に乗るようにして、少し高い自由エネルギー状態を経る。このとき、系の内部では磁壁が形成されている。整数のソリトン数を持つ状態から、磁壁を生成する過程を経て、異なるソリトン数の状態に変化させるためには、系は図 4.18 の黒い点線で示したようなエネルギーバリア $\delta F/(J^{\parallel}S^2N)$ を超えなければならないことになる。

ここで、このエネルギーバリアの高さを、適当な大きさの試料について評価してみる。図 4.18 において示した、 $w = 4$ と 5 の間に存在するエネルギーバリアの高さは、 $\delta F/(J^{\parallel}S^2N) \simeq 0.001$ 程度である。このエネルギーバリアは二つの磁壁のエネルギーに相当する。磁壁のエネルギーは、 N_x の大きさのみに依存し、 N_y, N_z にはよらない。これは、磁壁が x 軸方向にのびているためであり、 yz 平面内のどの位置に磁壁が存在するかはエネルギーに関係しないからである。ここで、例えば $N_x = 1\mu\text{m} \simeq 10^3$ サイトの試料を考えると、エネルギーバリアは $\delta F \simeq 0.001 \times J^{\parallel}S^2N_x \simeq 0.001 \times 10[\text{K}] \times 10^3 \simeq 10[\text{K}]$ 程度になる。これは、この計算で用いている温度 $T = 1 \times J^{\parallel}S^2 \simeq 10[\text{K}]$ と同程度であり、実際の系では $N_x = 1\mu\text{m}$ 程度のサイズの試料では、 $10[\text{K}]$ という低温においても、自由に磁壁を生成・消滅させ、ソリトン数を変化させることができることを意味する。

らせんの両端が作るエネルギーバリアと、磁壁の作るエネルギーバリアの大小関係はパラメーターによって異なる。例えば、 $H = 0$ でも磁壁が存在する状態を生成することができる。磁壁が入るとその部分でエネルギーが高くなるので、ゼロ磁場でもエネルギーバリアが存在することになる。外部磁場が十分小さいときは、系の端が作るエネルギーバリアの方が低いため、系はらせんの端からソリトンを出し入れする。一方で、磁場が大きいときには、系は磁壁を作ってソリトン数を変化させた方が、超えるべきエネルギーバリアが低くなり、ソリトンを変化させやすくなる。

ここで、エネルギーバリアのシステムサイズ依存性に注目してみる。磁壁の作るエネルギーバリアの高さは、 N_x の大きさに依存し、 N_x を大きくするほどエネルギーバリアが高くなる。また、らせんの両端が作るエネルギーバリアも、らせんに垂直な面 (xy 平面) の大きさに依存し、 N_x および N_y を大きくするほどエネルギーバリアが高くなる。これらの結果はいずれも、システムサイズが大きくなるほどヒステリシスが顕著になることを示している。しかし、実験的には、小さい

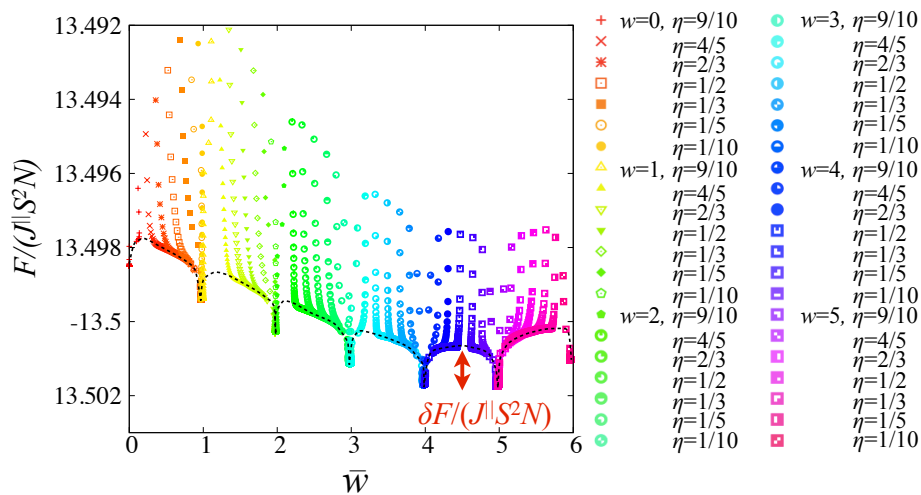


図 4.18: 初期状態として $w = 0, 1, \dots, 5$ のそれぞれに対して $\eta = [N_y/10], [N_y/5], [N_y/3], [N_y/2], [2N_y/3], [4N_y/5], [9N_y/10]$ を用意し、100 iteration ごとに自由エネルギーを計算した図。このうち、 $w = 4, \eta = [N_y/2]$ の結果は図 4.12(a) においても示している。パラメーターは $D/J^{\parallel} = 0.16, K/J^{\parallel} = 0.1, J^{\perp}/J^{\parallel} = 8, H/(J^{\parallel}S) = 0.01, H^{\parallel}/(J^{\parallel}S) = 10^{-14}, T/(J^{\parallel}S^2) = 1$ とした。

試料ほど明瞭なヒステリシスが観測されており、熱ゆらぎの効果など、本研究で用いた平均場の解析に含まれていない効果が、どのようにソリトンの出入りを抑制・促進するかは非自明である。

4.3 本章のまとめ

本章では、カイラルらせん磁性体の準安定状態とヒステリシスを議論した。有限サイズのカイラルらせん磁性体においては、ソリトン数という離散的な要素が重要な役割を果たし、系の中に存在するソリトン数と同数の一次転移が生じる。この機構が大きなヒステリシスを引き起こす過程を明らかにするため、まずカイラルらせん磁性体表面のエネルギーバリアを評価した。カイラルサインゴルドンモデルを用いて、絶対零度においてカイラルらせん磁性体表面に作られるエネルギーバリアを評価したところ、 $H_s = (4/\pi^2)H_c$ の磁場において初めてエネルギーバリアが消失することが分かった。

有限温度におけるシミュレーションでは、自由エネルギーのプロファイルにソリトン数に応じたエネルギーバリアが出現することを視覚的にあらわにし、減磁過程において大きなヒステリシスが出現する様子を明らかにした。見積もられたヒステリシスの幅は、解析的な結果 H_s とほぼ一致し、実験とも良く整合することを示した。

臨界磁場 H_c と H_s の間の領域においては、ソリトン数を保存することが可能である。例えば H_c よりも少し低い磁場を与えると、安定解として、あるソリトン数を得る。このソリトン数は磁場を下げて準安定解として H_s まで保存され、 $H_s < H < H_c$ においてはソリトン数は磁場に対して可逆となる。このソリトン数を制御・保存できる性質は、応用の観点からも重要な役割を果たすことが期待される。

ヒステリシスの幅は、低温ではあまり変化しないが、温度を上げるにつれてやや広がる傾向が見られた。また、DM 相互作用を大きくするとヒステリシスが顕著になっていく振る舞いが見られた。

解析的に得られた表面バリアの振る舞いは、第二種超伝導体の渦糸に関する研究でも同様のものが得られており、ソリトンや渦のような構造を持つ物質の表面バリアの一般的な考え方を与える。

一方で、我々はソリトン数を変化させる別のプロセスとして、らせん軸を含む二次元平面に磁壁を生成することによってソリトン数が増える過程を考えた。磁壁を含む状態を生成することに成功し、磁壁を生成することによって作られる多数の準安定状態と、ソリトン数を変化させる際のエネルギーバリアを評価した。磁壁が作るエネルギーバリアのシステムサイズ依存性は、らせんの両端が作るエネルギーバリアのシステムサイズ依存性よりも次元が一つ下がる。

また、磁壁の構造を詳しく調べ、磁壁の生成・消滅過程と、ソリトン数の変化が、磁気構造の連続変形によって得られることを示した。さらに、磁壁の大きさのパラメータ依存性を評価し、磁壁の大きさが $\sqrt{J^\perp/K_{\text{eff}}}$ ($K_{\text{eff}} \equiv 2(\sqrt{J^\parallel^2 + D^2} - J^\parallel) + K$) に比例することを示した。磁壁の大きさは磁場や温度には依存しない。カイラルらせん磁性体 CrNb_3S_6 においては、磁壁の大きさが約 8 nm と見積もられる。

第5章 まとめと展望

5.1 本研究の成果と意義

本研究はカイラルらせん磁性体のマクロな平衡状態の統一的な理解と、準安定状態の理論を与えるものである。カイラルらせん磁性体は、特に CrNb_3S_6 の結晶について、現在も実験的な研究が飛躍的に進んでおり、未来の磁気情報記録デバイス素子としての活用を見据え、基礎物理を構築することが重要な課題として提起されている。その中で、理論的な立場から有限温度における詳細な物性を明らかにしたことは、本研究の成果の一つである。今回評価した h_0 ラインによって、準安定な孤立ソリトンの存在範囲が示され、実験的に高磁場の一様相で観測されていたソリトンについて、その構造の起源が明らかとなった。また、従来のカイラルサインゴルドンモデルを用いた理論研究においては、有限温度の現象論的な解析において、磁気モーメントの長さの空間的な変調が考慮されていなかったため、転移の次数などの有限温度における多彩な物性の多くが見落とされてきた。 h_0 ラインの評価によって、これまで見過ごされてきたカイラルファン構造も注目を与えることにつながった。

また、実験的に観測されているヒステリシスが、マクロな一次転移とは関係せず、らせんの両端の効果や、磁壁の生成に起因するものであることを明らかにしたことは、本研究のもう一つの成果である。実験的に一次転移の存在を示すには、ヒステリシスの観測や、比熱の発散傾向・潜熱の測定などを行うことが基本である。しかし、カイラルらせん磁性体で発現する核生成型の相転移では、らせんの端の効果や磁壁の生成によって作られる多数の準安定状態が、明瞭なヒステリシスを生み、これがマクロな一次転移に起因するヒステリシスの観測を困難にする。さらに、核生成型の二次転移で見られる物理量の特異性が、無限大の傾きをもつなどの特徴があることから、一次転移特有の飛びと区別しにくく、物理量の測定で転移の次数を判定することはきわめて難しい。核生成型の相転移では、孤立ソリトンの引力・斥力機構が転移の次数を定めることから、実験的に一次転移を捉えるためには孤立ソリトンの振る舞いを観測することが鍵となる。一方で、ソリトン数に対応した多数の準安定状態は、必要なソリトン数の保存や制御といった新たな技術的応用の可能性を見出すものであり、この機構が明らかにされたことは応用の観点からも重要な成果である。

カイラルらせん磁性体は、純粹に一つの理論模型としての価値もある。交換相互作用と DM 相互作用の競合という、非常にシンプルなモデルであるにも拘らず、平均場の範囲内でも多彩な物性が現れる。不安定型の相転移は、イジングモデルやハイゼンベルグモデルなどで発現する、物理分野では身近な相転移の一つであるが、カイラルらせん磁性体で発現する核生成型の相転移は、孤立ソリトンという特殊な物性が相転移の性質を決定する。ソリトンに限らず、空間的に局在するトポロジカルな構造を持つ物質に対して、本研究で用いた解析手法は有効であり、その応用の幅は広い。すでに知られているものとしては、カイラルらせん磁性体に斜め磁場をかけたときの相図 [47] や、スキルミオンの相図 [88] が、今回得られた相図に良く似ており、これらの系からも、カイラルファン構造に対応する構造が出現する可能性が秘められている。また、ソリトンが系の表面で生み出すエネルギーバリアの評価などは、超伝導における量子渦においても同様の解析が

行われているなど、磁性分野に限らず幅広い分野において、本研究成果を足がかりとした研究発展が期待される。

5.2 今後の展望

本研究は、平均場近似の範囲内でのカイラルらせん磁性体の物性を明らかにするものであった。熱ゆらぎの効果や伝導電子との相互作用、量子性など、今回の解析には含まれていない効果は多数ある。また、平均場で解析できる物性は平衡状態・準安定状態のみであり、ソリトンの動的な性質などは知ることができない。

第4章において、我々は系にソリトンが出入りするプロセスを二通りのパターンに分けて考えた。しかし、パラメーター領域や試料の形状などに依存してどちらかのプロセスが有意に働くとしても、実際にはらせんの両端からのソリトンの出入りと磁壁の生成は複合的に起こると考えられる。また、我々は減磁過程で現れる磁化曲線のヒステリシスをよく説明できたが、増磁過程については平均場の範囲内では十分な説明ができていない。さらに、システムサイズや、システムの形状依存性についても実験と整合していない点はまだあり、実際の物質において、どのような境界条件が働き、どのようなパラメーター領域でどのようにソリトン数を変化させているのか、という点は、まだ明確でない部分が多く残されている。これらに関しては、dipole相互作用を入れて形状依存性を調べることや、ランダウーリフシッツェーギルバート (LLG) 方程式を用いた実時間の緩和過程のシミュレート [59] などにより、実際にどのようなプロセスを経てソリトンが出入りするのかを解析していくことが必要であると考えられる。

また、本研究では主に CrNb_3S_6 を念頭に置き、このパラメーターを用いた解析を中心に行ってきたが、他のカイラルらせん磁性体についてもまだソリトン解析という観点での研究は進んでいないところが多い。特に、カイラルらせん磁性体 YbNi_3Al_9 の物性は興味深い [80, 81, 96]。この系は約 96 度の回転角で磁気モーメントがらせんを形成すると知られているが、このような大きな角度になる起源や、Cu のドーピングによって臨界磁場が劇的に変化する振る舞いなどは理論的な補強がまだ進んでいないところである。この系では、DM 相互作用だけではらせんの回転角を説明することができないため、次近接相互作用の影響を考慮する必要があると考えられている。また、 CsCuCl_3 [97] は、面内が反強磁性の三角格子を組むカイラルらせん磁性体であり、面内のフラストレーションも物性解析に重要な役割を果たす [98]。

一方で、多様な角度からカイラルらせん磁性体の物性を解析する理論研究が、現在急速に進んできている。たとえば、異方性の効果と斜め磁場を入れたときの物性や [47, 77, 89, 94, 99]、伝導電子の作用 [100–106]、磁気共鳴 [107, 108]、超伝導体とカイラル磁性体の接合系の理論 [109] など、様々な広がりを見せている。その中でも、実用化を目指すにあたってはソリトンの駆動・制御という点が重要な特性として位置づけられており、今後も更なる研究が望まれる部分である。

謝辞

本論文の第 2, 3 章は、指導教員の加藤雄介先生、埼玉大学の星野晋太郎さん、加藤研究室の正木祐輔さん、広島大学の A. O. Leonov さん、放送大学の岸根順一郎先生との共同研究です。また、第 4 章は加藤雄介先生、正木祐輔さん、および大阪府立大学の戸川欣彦先生、戸川研究室の青木瑠也さんとの共同研究です。

本研究を進めるにあたり、丁寧なご指導と、的確なアドバイスを下さった、指導教員の加藤雄介先生に感謝致します。らせんの両端のエネルギーマリアの評価は、先生のノートを参考にしています。また加藤先生が解析された、カイラルサインゴルドンモデルに温度効果を平均場近似に基づいて取り入れた、拡張カイラルサインゴルドンモデルの結果は、空間的な磁気モーメントの変調を取り入れることの重要性が明らかにするものであり、大変参考となりました。

星野晋太郎さんには、多くの議論を通じて、研究の進め方・考え方を学ばせていただきました。比熱の解析的表式に関しては、星野さんの助言が大変参考になりました。

同研究室の正木祐輔さんからは、研究結果について多くのコメントを頂き、大変参考にさせて頂きました。細部にわたるご指摘の数々は、本論文の至る所に反映されています。また、孤立ソリトンの漸近形の解析は、正木さんのノートを参考にしています。

A. O. Leonov さん、A. N. Bogdanov 先生からは、Schaub, Mukamel [45] などの関連論文を提示していただき、カイラルらせん磁性体の相転移の理解が飛躍的に進みました。 h_0 ラインの解析などは Leonov さんのスキルミオン系における研究成果を参考にしています。

放送大学の岸根順一郎先生には、一次元カイラルらせん磁性体の解析の手法を丁寧に教えていただき、研究のテーマ設定に関してお世話になりました。

カイラルらせん磁性体の実験について、大阪府立大学の戸川欣彦先生、青木瑠也さんには細かい部分に至るまで、さまざまな興味深い結果を教えてくださいました。また、磁気抵抗曲線の追加実験をしていただき、データの一部をご提供いただきました。

九州工業大学の美藤先生、理研 SPring-8 の大隅先生には、微小試料を用いたカイラルらせん磁性体のヒステリシスの実験結果の多くを教えてくださいました。また、東邦大学の大江先生には、LLG を用いた減磁過程のヒステリシスの解析結果を示していただきました。

広島大学キラル国際研究拠点グループの先生方からも、大いに刺激を頂きました。とくにグループの拠点である広島大学の井上先生に感謝するとともに、 YbNi_3Al_9 系の実験結果について多くの議論をさせていただいた名古屋工業大学の大原先生、 CrNb_3S_6 の低温における量子性について議論して下さった青山学院大学の高阪さんほか、たくさんの先生方に感謝致します。また、本研究はキラル国際研究拠点・日本学術振興会 科学研究費助成事業 基盤研究 (S)・日本学術振興会 研究拠点形成事業 (Core-to-Core) A より、資金的な援助を受けています。

また、同研究室の堤さん、黒澤さん、越田さん、須貝さん、寒川さん、福井さんには、発表練習などを通して多くの示唆を頂きました。また、東京大学の福島先生、福島研の西川さんとも、モンテカルロ計算などの数値計算に関連した議論をさせていただきました。

本研究は JSPS 科研費 JP16J00091 の助成を受けたものです。

この研究の数値計算は、東京大学物性研究所におけるスーパーコンピューターシステムを用いています。

補足 A カイラルサインゴルドンモデル

A.1 連続体近似

一次元カイラルらせん磁性体のハミルトニアン

$$\mathcal{H} = -J \sum_{\ell} \mathbf{S}_{\ell} \cdot \mathbf{S}_{\ell+1} - \mathbf{D} \cdot \sum_{\ell} \mathbf{S}_{\ell} \times \mathbf{S}_{\ell+1} - \mathbf{H} \cdot \sum_{\ell} \mathbf{S}_{\ell} \quad (\text{A.1.1})$$

を考える。ここで $J (> 0)$ は磁気モーメント間の強磁性的交換相互作用、 $\mathbf{D} = D\hat{z}$ は DM 相互作用、 $\mathbf{H} = g\mu_B h \hat{x}$ は外部磁場で、 \mathbf{S}_{ℓ} は ℓ 番目のサイトの磁気モーメントを表す。 ℓ 番目のサイトの磁気モーメントが x 軸となす角を ϕ_{ℓ} とおくと、ハミルトニアンは

$$\mathcal{H} = -JS^2 \sum_{\ell} \cos(\phi_{\ell} - \phi_{\ell+1}) - DS^2 \sum_{\ell} \sin(\phi_{\ell} - \phi_{\ell+1}) - g\mu_B h S \sum_{\ell} \cos \phi_{\ell} \quad (\text{A.1.2})$$

と書ける。これを連続体近似するために以下の操作を行う；

$$\ell \rightarrow z, \quad \sum_{\ell} \rightarrow \int \frac{dz}{a_0}, \quad \phi_{\ell} \rightarrow \phi(z), \quad \phi_{\ell+1} \rightarrow \phi(z + a_0) = \phi(z) + a_0 \frac{d\phi}{dz} + \dots \quad (\text{A.1.3})$$

すると、

$$\cos(\phi_{\ell} - \phi_{\ell+1}) \rightarrow \cos(\phi(z) - \phi(z + a_0)) \simeq \cos(-a_0 \frac{d\phi}{dz}) \simeq 1 - \frac{a_0^2}{2!} \left(\frac{d\phi}{dz}\right)^2 \quad (\text{A.1.4})$$

$$\sin(\phi_{\ell} - \phi_{\ell+1}) \rightarrow \sin(\phi(z) - \phi(z + a_0)) \simeq \sin(-a_0 \frac{d\phi}{dz}) \simeq -a_0 \frac{d\phi}{dz} \quad (\text{A.1.5})$$

より

$$\mathcal{H} = JS^2 \int_0^{NL} \frac{dz}{a_0} \left[\frac{a_0^2}{2} \left(\frac{d\phi}{dz}\right)^2 + \frac{D}{J} a_0 \frac{d\phi}{dz} - \frac{g\mu_B h}{JS} \cos \phi \right] \quad (\text{A.1.6})$$

を得る。ここで、 L はらせんの周期 (ソリトン間距離)、 N はらせんの巻き数 (系のソリトン数) とする。 NL は系の全長である。また、系に周期的境界条件 $\phi(NL) - \phi(0) = 2\pi N$ を課すことにする。さらに、 $a_0 = 1$ とし、

$$\alpha = \arctan\left(\frac{D}{J}\right) \simeq \frac{D}{J} \equiv Q_0, \quad (\text{A.1.7})$$

$$\frac{g\mu_B h}{JS} \equiv m^2 \quad (\text{A.1.8})$$

を定義すると、カイラルサインゴルドンモデルのハミルトニアン：

$$\mathcal{H} = JS^2 \int_0^{NL} dz \left[\frac{1}{2} \left(\frac{d\phi}{dz}\right)^2 - Q_0 \frac{d\phi}{dz} - m^2 \cos \phi \right] \quad (\text{A.1.9})$$

を得る。

カイラルサインゴルドン模型を変分解析しようとする、式 (A.1.9) の第二項目は

$$-Q_0 \int_0^{NL} \frac{d\phi}{dz} dz = -Q_0[\phi(NL) - \phi(0)] = \text{const.} \quad (\text{A.1.10})$$

より変分をとると消えてしまう。これはDM相互作用の項が消えてしまうということである。つまり、 $\mathcal{H}[\phi]$ の変分をとったからといって系の基底状態は決まらない。そのため以下では次のような手順を踏む。(手順 i) まず (A.1.9) の第一項、第三項で ϕ についての変分を実行する。すると未定定数 κ が出てくる。この未定定数をエネルギーが最小になるように決めれば良い。そのために(手順 ii) ハミルトニアンをこの定数の関数 $\mathcal{H}[\kappa]$ として改めて表し、(手順 iii) もう一度 κ について変分をとることによりDM相互作用を含めた基底状態を決定する。

(手順 i) 式 (A.1.9) の第一、三項目に関して ϕ についての変分をとると、

$$\begin{aligned} 0 &= \delta\mathcal{H} = \mathcal{H}[\phi + \delta\phi] - \mathcal{H}[\phi] \\ &= \int_0^{NL} \left[\frac{1}{2} \left(2 \frac{d\phi}{dz} \frac{d\delta\phi}{dz} \right) - m^2 \sin \phi \delta\phi \right] \\ &= \int_0^{NL} \left[-\frac{d^2\phi}{dz^2} - m^2 \sin \phi \right] \delta\phi \end{aligned} \quad (\text{A.1.11})$$

となり、運動方程式

$$\frac{d^2\phi}{dz^2} = -m^2 \sin \phi \quad (\text{A.1.12})$$

を得る。両辺に $d\phi/dz$ をかけると

$$\frac{d\phi}{dz} \frac{d^2\phi}{dz^2} = -m^2 \sin \phi \frac{d\phi}{dz} \quad (\text{A.1.13})$$

より

$$\frac{1}{2} \frac{d}{dz} \left(\frac{d\phi}{dz} \right)^2 = \frac{d}{dz} (m^2 \cos \phi) \quad (\text{A.1.14})$$

となり、これを z で積分することで

$$\frac{1}{2} \left(\frac{d\phi}{dz} \right)^2 = m^2 \cos \phi + c \quad (\text{A.1.15})$$

を得る。ここで c は積分定数である。これをさらに

$$\begin{aligned} \frac{1}{2} \left(\frac{d\phi}{dz} \right)^2 &= m^2 \left(1 - 2 \sin^2 \frac{\phi}{2} \right) + c \\ &= (c + m^2) \left(1 - \frac{2m^2}{c + m^2} \sin^2 \frac{\phi}{2} \right) \\ &= \frac{2m^2}{\kappa^2} \left(1 - \kappa^2 \sin^2 \frac{\phi}{2} \right) \end{aligned} \quad (\text{A.1.16})$$

と書き直す。ただし、

$$\kappa^2 \equiv \frac{2m^2}{c + m^2} \quad (\text{A.1.17})$$

とおいた。ここで $\phi/2 = \Phi$ とおくと

$$\frac{d\Phi}{dz} = \frac{m}{\kappa} \sqrt{1 - \kappa^2 \sin^2 \Phi} \quad (\text{A.1.18})$$

とかけ、積分を実行すると

$$\frac{m}{\kappa} z = \int_0^\Phi \frac{d\Phi}{\sqrt{1 - \kappa^2 \sin^2 \Phi}} = \text{sn}^{-1}(\sin \Phi) \quad (\text{A.1.19})$$

すなわち

$$\sin \Phi = \text{sn} \left(\frac{m}{\kappa} z \right) \quad (\text{A.1.20})$$

を得る。ここで sn はヤコビの楕円関数である。

(手順 ii) 得られた変分解 (A.1.20) をハミルトニアン (A.1.9) に戻し、ハミルトニアンを κ の関数として表すことを考える。まず変分解の両辺を z で微分すると

$$\frac{d}{dz} \sin \frac{\phi}{2} = \frac{d}{dz} \text{sn} \left(\frac{m}{\kappa} z \right) \quad (\text{A.1.21})$$

より、以下を得る：

$$\frac{1}{2} \cos \frac{\phi}{2} \frac{d\phi}{dz} = \frac{m}{\kappa} \text{cn} \left(\frac{m}{\kappa} z \right) \text{dn} \left(\frac{m}{\kappa} z \right). \quad (\text{A.1.22})$$

ここで $\sin(\phi/2) = \text{sn}(mz/\kappa)$ より $\cos(\phi/2) = \text{cn}(mz/\kappa)$ であるから、

$$\frac{d\phi}{dz} = 2 \frac{m}{\kappa} \text{dn} \left(\frac{m}{\kappa} z \right) \quad (\text{A.1.23})$$

を得る。一方

$$\begin{aligned} m^2 \cos \phi &= m^2 (1 - 2 \sin^2 \frac{\phi}{2}) \\ &= m^2 - 2m^2 \text{sn}^2 \left(\frac{m}{\kappa} z \right) \\ &= m^2 - \frac{2m^2}{\kappa^2} \left(1 - \text{dn}^2 \left(\frac{m}{\kappa} z \right) \right) \end{aligned} \quad (\text{A.1.24})$$

(最後の変換は $1 - \kappa^2 \text{sn}^2 x = \text{dn}^2 x$ であることを用いた) であるから、カイラルサインゴルドンのハミルトニアン (A.1.9) の第一項と第三項は

$$\begin{aligned} JS^2 \int_0^{NL} dz &\left[\frac{1}{2} \left(2 \frac{m}{\kappa} \right)^2 \text{dn}^2 \left(\frac{m}{\kappa} z \right) + m^2 - \frac{2m^2}{\kappa^2} \left(1 - \text{dn}^2 \left(\frac{m}{\kappa} z \right) \right) \right] \\ &= JS^2 \int_0^{NL} dz \left[4 \left(\frac{m}{\kappa} \right)^2 \text{dn}^2 \left(\frac{m}{\kappa} z \right) + m^2 - \frac{2m^2}{\kappa^2} \right] \end{aligned} \quad (\text{A.1.25})$$

となる。第二項の積分を実行した $-Q_0[\phi(NL) - \phi(0)]$ は定数に見えるが、 dn 関数の周期性より $(m/\kappa)L = 2K$ だから、らせんの周期 L は

$$L = \frac{2\kappa K}{m} \quad (\text{A.1.26})$$

となり、 κ に依存する。ここで、 K は κ を母数とする第一種楕円積分である。また、

$$\begin{aligned}
\int_0^{NL} \operatorname{dn}^2\left(\frac{m}{\kappa}z\right) dz &= N \int_0^L \operatorname{dn}^2\left(\frac{m}{\kappa}z\right) dz \\
&= N \int_0^{2\kappa K/m} \operatorname{dn}^2\left(\frac{m}{\kappa}z\right) dz \\
&= N \int_0^{2K} \operatorname{dn}^2 \bar{z} \frac{\kappa}{m} d\bar{z} \\
&= N \frac{2\kappa}{m} \int_0^K \operatorname{dn}^2 \bar{z} d\bar{z} \\
&= N \frac{2\kappa E(\kappa)}{m}
\end{aligned} \tag{A.1.27}$$

となる。ここで第一種楕円積分と第二種楕円積分 E (母数 κ) との関係

$$E(\kappa) = \int_0^K \operatorname{dn}^2 \bar{z} d\bar{z} \tag{A.1.28}$$

を用いた。以上より、ハミルトニアンは

$$\frac{\mathcal{H}}{JS^2} = 4 \left(\frac{m}{\kappa}\right)^2 N \frac{2\kappa E}{m} + m^2 NL - \frac{2m^2}{\kappa^2} NL - Q_0[\phi(NL) - \phi(0)] \tag{A.1.29}$$

と書き直せる。ここで、周期的境界条件 $\phi(NL) - \phi(0) = 2\pi N$ および $L = 2\kappa K/m$ より

$$\begin{aligned}
\frac{\mathcal{H}}{JS^2 NL} &= 4 \left(\frac{m}{\kappa}\right)^2 \frac{m}{2\kappa K} \frac{2\kappa E}{m} + m^2 - \frac{2m^2}{\kappa^2} - 2\pi Q_0 \frac{m}{2\kappa K} \\
&= 4 \left(\frac{m}{\kappa}\right)^2 \frac{E}{K} + m^2 - \frac{2m^2}{\kappa^2} - \frac{\pi m Q_0}{\kappa K} \\
&= 2m^2 \left[2 \frac{1}{\kappa^2} \frac{E}{K} + \frac{1}{2} - \frac{1}{\kappa^2} - \frac{\pi Q_0}{2m} \frac{1}{\kappa K} \right]
\end{aligned} \tag{A.1.30}$$

を得る。二項目は κ に依存しないので無視すると、 κ の関数としてハミルトニアンが以下のように求められた；

$$\frac{\mathcal{H}[\kappa]}{2m^2 JS^2 NL} = 2 \frac{1}{\kappa^2} \frac{E}{K} - \frac{1}{\kappa^2} - \frac{\pi Q_0}{2m} \frac{1}{\kappa K}. \tag{A.1.31}$$

(手順 iii) ハミルトニアン $\mathcal{H}[\kappa]$ の κ についての変分をとる。ハミルトニアンの第一項目については

$$\begin{aligned}
\frac{d}{d\kappa} \left(\frac{2E}{\kappa^2 K} \right) &= 2 \left[-\frac{2}{\kappa^3} \frac{E}{K} - \frac{1}{\kappa^2} \frac{E}{K^2} \frac{dK}{d\kappa} + \frac{1}{\kappa^2 K} \frac{dE}{d\kappa} \right] \\
&= 2 \left[-\frac{2}{\kappa^3} \frac{E}{K} - \frac{1}{\kappa^2} \frac{E}{K^2} \frac{1}{\kappa} \left(\frac{E}{\kappa'^2} - K \right) + \frac{1}{\kappa^2 K} \frac{E - K}{\kappa} \right] \\
&= -\frac{2}{\kappa^3 \kappa'^2} \frac{E^2}{K^2} - \frac{2}{\kappa^3}
\end{aligned} \tag{A.1.32}$$

となる。ここで $\kappa'^2 = 1 - \kappa^2$ である。また、微分公式 $dE/d\kappa = (E - K)/\kappa$, $dK/d\kappa = (E/\kappa'^2 - K)/\kappa$ を用いた。ハミルトニアン第二項目については

$$\frac{d}{d\kappa} \left(\frac{1}{\kappa^2} \right) = -\frac{2}{\kappa^3}, \tag{A.1.33}$$

が得られ、また第三項目については

$$\begin{aligned} \frac{d}{d\kappa} \left(-\frac{1}{\kappa K} \right) &= \frac{1}{\kappa^2 K} + \frac{1}{\kappa K^2} \frac{dK}{d\kappa} \\ &= \frac{1}{\kappa^2 K} + \frac{1}{\kappa K^2} \frac{1}{\kappa} \left(\frac{E}{\kappa'^2} - K \right) \\ &= \frac{E}{\kappa^2 \kappa'^2 K^2} \end{aligned} \quad (\text{A.1.34})$$

となる。よって、

$$\frac{d}{d\kappa} \frac{\mathcal{H}[\kappa]}{2m^2 JS^2 NL} = -\frac{2E^2}{\kappa^3 \kappa'^2 K^2} + \frac{\pi Q_0}{2m} \frac{E}{\kappa^2 \kappa'^2 K^2} \quad (\text{A.1.35})$$

を得る。したがって $d\mathcal{H}/d\kappa = 0$ となるためには

$$\frac{2E}{\kappa} = \frac{\pi Q_0}{2m} \quad (\text{A.1.36})$$

となれば良い。 $m^2 = g\mu_B h / (JS)$ とおいていたので、

$$\frac{\kappa}{E} = \frac{4}{\pi Q_0} \sqrt{\frac{g\mu_B h}{JS}} \quad (\text{A.1.37})$$

を得る。つまり、外場 $g\mu_B h$ を与えれば κ が決まり、カイラルソリトン格子構造が決定する。

A.2 拡張カイラルサインゴルドンモデル

カイラルサインゴルドンモデルは絶対零度の系に適用される。有限温度の系をカイラルサインゴルドンモデルで取り扱うためには、温度効果をモーメントの長さを縮めることで取り入れなければならない。岸根らはこの温度効果を現象論的に取り入れて解析を行った。ここでは、カイラルサインゴルドンモデルに温度効果を平均場近似に基づいて取り入れた、近似の手法を紹介する。平均場ハミルトニアンから出発する。

$$\mathcal{H}^{\text{MF}} = - \sum_{\ell} (\mathbf{H}_{\ell}^{\text{eff}} \cdot \mathbf{S}_{\ell} + C_{\ell}) \quad (\text{A.2.1})$$

ここで有効磁場や定数項は以下のように書けるものである。

$$\mathbf{H}_{\ell}^{\text{eff}} = 4J^{\perp} \mathbf{M}_{\ell} + J^{\parallel} (\mathbf{M}_{\ell+1} + \mathbf{M}_{\ell-1}) + D(\mathbf{M}_{\ell+1} - \mathbf{M}_{\ell-1}) \times \hat{\mathbf{z}} + H \hat{\mathbf{x}} \quad (\text{A.2.2})$$

$$C_{\ell} = \frac{\mathbf{H}_{\ell}^{\text{eff}} - H \hat{\mathbf{x}}}{2} \cdot \mathbf{M}_{\ell} = 2J^{\perp} M_{\ell}^2 + \frac{1}{2} J^{\parallel} (\mathbf{M}_{\ell+1} + \mathbf{M}_{\ell-1}) \cdot \mathbf{M}_{\ell} + \frac{1}{2} D [(\mathbf{M}_{\ell+1} - \mathbf{M}_{\ell-1}) \times \hat{\mathbf{z}}] \cdot \mathbf{M}_{\ell} \quad (\text{A.2.3})$$

有効外場 $\mathbf{H}_{\ell}^{\text{eff}}$ に着目しよう。成分で書き下すと、

$$(\mathbf{H}_{\ell}^{\text{eff}})^x = 4J^{\perp} M_{\ell}^x + J^{\parallel} (M_{\ell+1}^x + M_{\ell-1}^x) + D(M_{\ell+1}^y - M_{\ell-1}^y) + H \quad (\text{A.2.4})$$

$$(\mathbf{H}_{\ell}^{\text{eff}})^y = 4J^{\perp} M_{\ell}^y + J^{\parallel} (M_{\ell+1}^y + M_{\ell-1}^y) - D(M_{\ell+1}^x - M_{\ell-1}^x) \quad (\text{A.2.5})$$

ここでカイラルサインゴルドンモデルの近似として constant amplitude (M_{ℓ} が一定) の条件を課す。 ℓ に依存するのはモーメントの角度のみである。 x 軸とモーメント \mathbf{M}_{ℓ} がなす角を θ_{ℓ} とおくと、

$$H^{\text{eff}} \cos \theta_{\ell} = 4J^{\perp} M \cos \theta_{\ell} + J^{\parallel} M (\cos \theta_{\ell+1} + \cos \theta_{\ell-1}) + DM (\sin \theta_{\ell+1} - \sin \theta_{\ell-1}) + H \quad (\text{A.2.6})$$

$$H^{\text{eff}} \sin \theta_{\ell} = 4J^{\perp} M \sin \theta_{\ell} + J^{\parallel} M (\sin \theta_{\ell+1} + \sin \theta_{\ell-1}) - DM (\cos \theta_{\ell+1} - \cos \theta_{\ell-1}) \quad (\text{A.2.7})$$

と書ける。ここで、 M_ℓ が一定ということは、 $M_\ell, M_{i\pm 1}$ のみで決まる H_ℓ^{eff} もサイト ℓ に依らないものとなる。 $\mathcal{J} = \sqrt{J^{\parallel 2} + D^2}$ および $\tan \alpha = D/J^{\parallel}$ を用いると、

$$\begin{aligned} H^{\text{eff}} \cos \theta_\ell &= 4J^\perp M \cos \theta_\ell + \mathcal{J}M(\cos \theta_{\ell+1} \cos \alpha + \cos \theta_{i-1} \cos \alpha) \\ &\quad + \mathcal{J}M(\sin \theta_{\ell+1} \sin \alpha - \sin \theta_{i-1} \sin \alpha) + H \end{aligned} \quad (\text{A.2.8})$$

$$\begin{aligned} H^{\text{eff}} \sin \theta_\ell &= 4J^\perp M \sin \theta_\ell + \mathcal{J}M(\sin \theta_{\ell+1} \cos \alpha + \sin \theta_{i-1} \cos \alpha) \\ &\quad - \mathcal{J}M(\cos \theta_{\ell+1} \sin \alpha - \cos \theta_{i-1} \sin \alpha) \end{aligned} \quad (\text{A.2.9})$$

とかける。整理すると、

$$H^{\text{eff}} \cos \theta_\ell = 4J^\perp M \cos \theta_\ell + \mathcal{J}M[\cos(\theta_{\ell+1} - \alpha) + \cos(\theta_{i-1} + \alpha)] + H \quad (\text{A.2.10})$$

$$H^{\text{eff}} \sin \theta_\ell = 4J^\perp M \sin \theta_\ell + \mathcal{J}M[\sin(\theta_{\ell+1} - \alpha) + \sin(\theta_{i-1} + \alpha)] \quad (\text{A.2.11})$$

(A.2.10) $\times \sin \theta_\ell$ - (A.2.11) $\times \cos \theta_\ell$ より

$$\begin{aligned} 0 &= \mathcal{J}M \sin \theta_\ell [\cos(\theta_{\ell+1} - \alpha) + \cos(\theta_{i-1} + \alpha)] - \mathcal{J}M \cos \theta_\ell [\sin(\theta_{\ell+1} - \alpha) + \sin(\theta_{i-1} + \alpha)] + H \sin \theta_\ell \\ &= -\mathcal{J}M[\sin(\theta_{\ell+1} - \theta_\ell - \alpha) - \sin(\theta_\ell - \theta_{i-1} - \alpha)] + H \sin \theta_\ell \\ &\simeq -\mathcal{J}M[(\theta_{\ell+1} - \theta_\ell - \alpha) - (\theta_\ell - \theta_{i-1} - \alpha)] + H \sin \theta_\ell \\ &\simeq -\mathcal{J}M \left[\left(\frac{\partial \theta_\ell}{\partial \ell} + \frac{1}{2} \frac{\partial^2 \theta_\ell}{\partial \ell^2} - \alpha \right) - \left(\frac{\partial \theta_\ell}{\partial \ell} - \frac{1}{2} \frac{\partial^2 \theta_\ell}{\partial \ell^2} - \alpha \right) \right] + H \sin \theta_\ell \\ &= -\mathcal{J}M \frac{\partial^2 \theta_\ell}{\partial \ell^2} + H \sin \theta_\ell \end{aligned} \quad (\text{A.2.12})$$

ここで $z = \ell a_0$ (a_0 は格子定数) を用いて、

$$\frac{\partial^2 \theta(z)}{\partial z^2} - m^2 \sin \theta(z) = 0, \quad m = \sqrt{\frac{H}{\mathcal{J} a_0^2 M}} \quad (\text{A.2.13})$$

を得る。この解は楕円関数 am を用いて

$$\theta(z) = \theta_0 + 2\text{sgn}(\alpha) \text{am} \left(\frac{mz}{\kappa}, \kappa \right) \quad (\text{A.2.14})$$

で書けることが知られている。ここで、 κ は楕円関数の母数で、今のところ未知数である。これを決定するために、自由エネルギーを最小化する条件

$$\frac{\partial F}{\partial \kappa} = 0 \quad (\text{A.2.15})$$

を課す。

準備として、 H^{eff} と $\partial H^{\text{eff}} / \partial \kappa$ の表式をまず調べよう。(A.2.10) $\times \cos \theta_\ell$ + (A.2.11) $\times \sin \theta_\ell$ より

$$\begin{aligned} H^{\text{eff}} &= 4J^\perp M + \mathcal{J}M \cos \theta_\ell [\cos(\theta_{\ell+1} - \alpha) + \cos(\theta_{i-1} + \alpha)] \\ &\quad + \mathcal{J}M \sin \theta_\ell [\sin(\theta_{\ell+1} - \alpha) + \sin(\theta_{i-1} + \alpha)] + H \cos \theta_\ell \\ &= 4J^\perp M + \mathcal{J}M[\cos(\theta_{\ell+1} - \theta_\ell - \alpha) + \cos(\theta_\ell - \theta_{i-1} - \alpha)] + H \cos \theta_\ell \end{aligned} \quad (\text{A.2.16})$$

Constant amplitude 近似より、 H^{eff} は ℓ に依らない。なので ℓ を含む三角関数は平均をとることにして、

$$H^{\text{eff}} = 4J^\perp M + \mathcal{J}M \langle [\cos(\theta_{\ell+1} - \theta_\ell - \alpha) + \cos(\theta_\ell - \theta_{i-1} - \alpha)] \rangle_z + H \langle \cos \theta_\ell \rangle_z \quad (\text{A.2.17})$$

よって

$$H^{\text{eff}} = 4J^\perp M + 2\mathcal{J}M \langle \cos(\theta_{\ell+1} - \theta_\ell - \alpha) \rangle_z + H \langle \cos \theta_\ell \rangle_z \quad (\text{A.2.18})$$

を得る。

ここで、

$$\begin{aligned} \cos(\theta_{\ell+1} - \theta_\ell - \alpha) &= 1 - 2 \sin^2 \left(\frac{\theta_{\ell+1} - \theta_\ell - \alpha}{2} \right) \\ &\simeq 1 - 2 \frac{(\theta_{\ell+1} - \theta_\ell - \alpha)^2}{4} \\ &\simeq 1 - \frac{1}{2} \left(a \frac{\partial \theta}{\partial z} - \alpha \right)^2 \end{aligned} \quad (\text{A.2.19})$$

さらに

$$\langle \cos \theta_\ell \rangle_z = -1 + \frac{2}{\kappa^2} - \frac{2E(\kappa)}{\kappa^2 K(\kappa)} \quad (\text{A.2.20})$$

および

$$\langle (a\partial_z \theta)^2 \rangle_z = 4 \left(\frac{ma}{\kappa} \right)^2 \frac{E(\kappa)}{K(\kappa)} \quad (\text{A.2.21})$$

$$\langle a\alpha(\partial_z \theta) \rangle_z = \frac{\pi ma\alpha}{\kappa K(\kappa)} \quad (\text{A.2.22})$$

$$\Rightarrow \langle (a\partial_z \theta - \alpha)^2 \rangle_z = \langle (a\partial_z \theta)^2 - 2a\alpha\partial_z \theta + \alpha^2 \rangle_z = 4 \left(\frac{ma}{\kappa} \right)^2 \frac{E(\kappa)}{K(\kappa)} - \frac{2\pi ma\alpha}{\kappa K(\kappa)} + \alpha^2 \quad (\text{A.2.23})$$

を用いて、

$$H^{\text{eff}} = 4J^\perp M + 2\mathcal{J}M \left[1 - \frac{1}{2} \left(4 \left(\frac{ma}{\kappa} \right)^2 \frac{E(\kappa)}{K(\kappa)} - \frac{2\pi ma\alpha}{\kappa K(\kappa)} + \alpha^2 \right) \right] + H \left[-1 + \frac{2}{\kappa^2} - \frac{2E(\kappa)}{\kappa^2 K(\kappa)} \right] \quad (\text{A.2.24})$$

また

$$m = \sqrt{\frac{H}{\mathcal{J}a^2 M}} \quad (\text{A.2.25})$$

であることを用いると

$$\begin{aligned} H^{\text{eff}} &= 4J^\perp M + 2\mathcal{J}M \left[1 - \frac{1}{2} \left(\frac{4a^2}{\kappa^2} \frac{H}{\mathcal{J}a^2 M} \frac{E(\kappa)}{K(\kappa)} - \frac{2\pi a\alpha}{\kappa K(\kappa)} \sqrt{\frac{H}{\mathcal{J}a^2 M}} + \alpha^2 \right) \right] \\ &\quad + H \left[-1 + \frac{2}{\kappa^2} - \frac{2E(\kappa)}{\kappa^2 K(\kappa)} \right] \\ &= 4J^\perp M + 2\mathcal{J}M - \frac{4H}{\kappa^2} \frac{E(\kappa)}{K(\kappa)} + \frac{2\mathcal{J}M\pi\alpha}{\kappa K(\kappa)} \sqrt{\frac{H}{\mathcal{J}M}} - \alpha^2 \mathcal{J}M + H \left[-1 + \frac{2}{\kappa^2} - \frac{2E(\kappa)}{\kappa^2 K(\kappa)} \right] \\ &= 4J^\perp M + 2\mathcal{J}M - \alpha^2 \mathcal{J}M + \frac{2\mathcal{J}M\pi\alpha}{\kappa K(\kappa)} \sqrt{\frac{H}{\mathcal{J}M}} + H \left[-1 + \frac{2}{\kappa^2} - \frac{6E(\kappa)}{\kappa^2 K(\kappa)} \right] \\ &= (4J^\perp + 2\mathcal{J} - \alpha^2 \mathcal{J})M + \frac{2\pi\alpha}{\kappa K(\kappa)} \sqrt{\mathcal{J}HM} + H\Theta(\kappa) \end{aligned} \quad (\text{A.2.26})$$

ここで

$$\Theta(\kappa) \equiv -1 + \frac{2}{\kappa^2} - \frac{6E(\kappa)}{\kappa^2 K(\kappa)} \quad (\text{A.2.27})$$

とおいた。一方 $\partial H^{\text{eff}}/\partial \kappa$ は、

$$\begin{aligned} \frac{\partial H^{\text{eff}}}{\partial \kappa} &= (4J^\perp + 2\mathcal{J} - \alpha^2 \mathcal{J}) \frac{\partial M}{\partial \kappa} + \frac{\partial}{\partial \kappa} \left(\frac{2\pi\alpha}{\kappa K(\kappa)} \sqrt{\mathcal{J}HM} \right) + H \frac{d\Theta(\kappa)}{d\kappa} \\ &= (4J^\perp + 2\mathcal{J} - \alpha^2 \mathcal{J}) \frac{\partial M}{\partial H^{\text{eff}}} \frac{\partial H^{\text{eff}}}{\partial \kappa} + 2\pi\alpha \sqrt{\mathcal{J}HM} \frac{d}{d\kappa} \left(\frac{1}{\kappa K(\kappa)} \right) \\ &\quad + \frac{2\pi\alpha}{\kappa K(\kappa)} \frac{1}{2} \sqrt{\frac{H\mathcal{J}}{M}} \frac{\partial M}{\partial H^{\text{eff}}} \frac{\partial H^{\text{eff}}}{\partial \kappa} + H \frac{d\Theta(\kappa)}{d\kappa} \end{aligned} \quad (\text{A.2.28})$$

より

$$\left[1 - (4J^\perp + 2\mathcal{J} - \alpha^2 \mathcal{J}) \frac{\partial M}{\partial H^{\text{eff}}} - \frac{\pi\alpha}{\kappa K(\kappa)} \sqrt{\frac{H\mathcal{J}}{M}} \frac{\partial M}{\partial H^{\text{eff}}} \right] \frac{\partial H^{\text{eff}}}{\partial \kappa} = 2\pi\alpha \sqrt{\mathcal{J}HM} \frac{d}{d\kappa} \left(\frac{1}{\kappa K(\kappa)} \right) + H \frac{d\Theta(\kappa)}{d\kappa} \quad (\text{A.2.29})$$

では、自由エネルギーを考えよう。平均場の表式では

$$F = -\frac{1}{\beta} \sum_\ell \log \left(\frac{2 \sinh(\beta H^{\text{eff}})}{\beta H^{\text{eff}}} \right) + \sum_\ell C_\ell \quad (\text{A.2.30})$$

これを最小化する。

$$\frac{\partial F}{\partial \kappa} = 0 \quad (\text{A.2.31})$$

ここで、

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial \kappa} \left[-\frac{1}{\beta} \log \left(\frac{2 \sinh(\beta H^{\text{eff}})}{\beta H^{\text{eff}}} \right) \right] &= -\frac{1}{\beta} \frac{\beta H^{\text{eff}}}{2 \sinh(\beta H^{\text{eff}})} \frac{\partial}{\partial \kappa} \left[\frac{2 \sinh(\beta H^{\text{eff}})}{\beta H^{\text{eff}}} \right] \\ &= -\frac{\beta H^{\text{eff}}}{2 \sinh(\beta H^{\text{eff}})} \left[\frac{2 \cosh(\beta H^{\text{eff}})}{\beta H^{\text{eff}}} \beta \frac{\partial H^{\text{eff}}}{\partial \kappa} - \frac{2 \sinh(\beta H^{\text{eff}})}{(\beta H^{\text{eff}})^2} \beta \frac{\partial H^{\text{eff}}}{\partial \kappa} \right] \\ &= -\left[\coth(\beta H^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H^{\text{eff}}} \right] \frac{\partial H^{\text{eff}}}{\partial \kappa} \\ &= -M \frac{\partial H^{\text{eff}}}{\partial \kappa} \end{aligned} \quad (\text{A.2.32})$$

このとき、

$$M = \coth(\beta H^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H^{\text{eff}}} \quad (\text{A.2.33})$$

を用いた。一方、

$$\begin{aligned} C_\ell &= \frac{1}{2} (H^{\text{eff}} M - HM \langle \cos \theta_\ell \rangle) \\ &= 2J^\perp M^2 + \mathcal{J} M^2 \langle \cos(\theta_{\ell+1} - \theta_\ell + \alpha) \rangle \\ &= 2J^\perp M^2 + \mathcal{J} M^2 \left[1 - 2 \left(\frac{ma}{\kappa} \right)^2 \frac{E(\kappa)}{K(\kappa)} + \frac{\pi ma\alpha}{\kappa K(\kappa)} - \frac{\alpha^2}{2} \right] \\ &= (2J^\perp + \mathcal{J} - \alpha^2 \mathcal{J}/2) M^2 - \frac{2HME(\kappa)}{\kappa^2 K(\kappa)} + \frac{\pi\alpha}{\kappa K(\kappa)} \sqrt{\mathcal{J}HM^3} \end{aligned} \quad (\text{A.2.34})$$

より

$$\begin{aligned}
\frac{\partial C_\ell}{\partial \kappa} &= \frac{\partial}{\partial \kappa} \left\{ (2J^\perp + \mathcal{J} - \alpha^2 \mathcal{J}/2)M^2 - \frac{2HME(\kappa)}{\kappa^2 K(\kappa)} + \frac{\pi\alpha}{\kappa K(\kappa)} \sqrt{\mathcal{J}HM^3} \right\} \\
&= (2J^\perp + \mathcal{J} - \alpha^2 \mathcal{J}/2)2M \frac{\partial M}{\partial \kappa} - \frac{2HE(\kappa)}{\kappa^2 K(\kappa)} \frac{\partial M}{\partial \kappa} - 2HM \frac{d}{d\kappa} \left(\frac{E(\kappa)}{\kappa^2 K(\kappa)} \right) \\
&\quad + \frac{3\pi\alpha}{2\kappa K(\kappa)} \sqrt{\mathcal{J}HM} \frac{\partial M}{\partial \kappa} + \pi\alpha \sqrt{\mathcal{J}HM^3} \frac{d}{d\kappa} \left(\frac{1}{\kappa K(\kappa)} \right) \\
&= (4J^\perp + 2\mathcal{J} - \alpha^2 \mathcal{J})M \frac{\partial M}{\partial H^{\text{eff}}} \frac{\partial H^{\text{eff}}}{\partial \kappa} - \frac{2HE(\kappa)}{\kappa^2 K(\kappa)} \frac{\partial M}{\partial H^{\text{eff}}} \frac{\partial H^{\text{eff}}}{\partial \kappa} - 2HM \frac{d}{d\kappa} \left(\frac{E(\kappa)}{\kappa^2 K(\kappa)} \right) \\
&\quad + \frac{3\pi\alpha}{2\kappa K(\kappa)} \sqrt{\mathcal{J}HM} \frac{\partial M}{\partial H^{\text{eff}}} \frac{\partial H^{\text{eff}}}{\partial \kappa} + \pi\alpha \sqrt{\mathcal{J}HM^3} \frac{d}{d\kappa} \left(\frac{1}{\kappa K(\kappa)} \right) \tag{A.2.35}
\end{aligned}$$

である。以上から、自由エネルギー最小の条件は

$$\begin{aligned}
0 &= -M \frac{\partial H^{\text{eff}}}{\partial \kappa} + (4J^\perp + 2\mathcal{J} - \alpha^2 \mathcal{J})M \frac{\partial M}{\partial H^{\text{eff}}} \frac{\partial H^{\text{eff}}}{\partial \kappa} - \frac{2HE(\kappa)}{\kappa^2 K(\kappa)} \frac{\partial M}{\partial H^{\text{eff}}} \frac{\partial H^{\text{eff}}}{\partial \kappa} \\
&\quad - 2HM \frac{d}{d\kappa} \left(\frac{E(\kappa)}{\kappa^2 K(\kappa)} \right) + \frac{3\pi\alpha}{2\kappa K(\kappa)} \sqrt{\mathcal{J}HM} \frac{\partial M}{\partial H^{\text{eff}}} \frac{\partial H^{\text{eff}}}{\partial \kappa} + \pi\alpha \sqrt{\mathcal{J}HM^3} \frac{d}{d\kappa} \left(\frac{1}{\kappa K(\kappa)} \right) \tag{A.2.36}
\end{aligned}$$

整理して

$$\begin{aligned}
&2HM \frac{d}{d\kappa} \left(\frac{E(\kappa)}{\kappa^2 K(\kappa)} \right) - \pi\alpha \sqrt{\mathcal{J}HM^3} \frac{d}{d\kappa} \left(\frac{1}{\kappa K(\kappa)} \right) \\
&= \left[-M + (4J^\perp + 2\mathcal{J} - \alpha^2 \mathcal{J})M \frac{\partial M}{\partial H^{\text{eff}}} - \frac{2HE(\kappa)}{\kappa^2 K(\kappa)} \frac{\partial M}{\partial H^{\text{eff}}} + \frac{3\pi\alpha}{2\kappa K(\kappa)} \sqrt{\mathcal{J}HM} \frac{\partial M}{\partial H^{\text{eff}}} \right] \frac{\partial H^{\text{eff}}}{\partial \kappa} \tag{A.2.37}
\end{aligned}$$

と書ける。ここで式 (A.2.29) を用いて $\partial H^{\text{eff}}/\partial \kappa$ を消去する。式 (A.2.29) 左辺の $[\]$ を式 (A.2.37) の両辺にかける。すると式 (A.2.37) の右辺が (A.2.29) の右辺と等しくなるので、

$$\begin{aligned}
&\left[1 - (4J^\perp + 2\mathcal{J} - \alpha^2 \mathcal{J}) \frac{\partial M}{\partial H^{\text{eff}}} - \frac{\pi\alpha}{\kappa K(\kappa)} \sqrt{\frac{H\mathcal{J}}{M}} \frac{\partial M}{\partial H^{\text{eff}}} \right] \left[2HM \frac{d}{d\kappa} \left(\frac{E(\kappa)}{\kappa^2 K(\kappa)} \right) - \pi\alpha \sqrt{\mathcal{J}HM^3} \frac{d}{d\kappa} \left(\frac{1}{\kappa K(\kappa)} \right) \right] \\
&= \left[-M + (4J^\perp + 2\mathcal{J} - \alpha^2 \mathcal{J})M \frac{\partial M}{\partial H^{\text{eff}}} - \frac{2HE(\kappa)}{\kappa^2 K(\kappa)} \frac{\partial M}{\partial H^{\text{eff}}} + \frac{3\pi\alpha}{2\kappa K(\kappa)} \sqrt{\mathcal{J}HM} \frac{\partial M}{\partial H^{\text{eff}}} \right] \\
&\quad \times \left[2\pi\alpha \sqrt{\mathcal{J}HM} \frac{d}{d\kappa} \left(\frac{1}{\kappa K(\kappa)} \right) + H \frac{d\Theta(\kappa)}{d\kappa} \right] \tag{A.2.38}
\end{aligned}$$

これを解くことで κ を得る。

ここでは、カイラルサインゴルドンモデルに、平均場近似に基づいた温度効果を取り入れている。この計算では、カイラルサインゴルドンモデルに連続体近似が使われていること、また磁気モーメントの長さが、系全体で一様であると仮定している点が、本論文で用いている平均場理論と異なっている。そのため、この解析では、絶対零度における相転移 ($H_c^T=0$)、およびゼロ磁場における相転移 ($T_c^H=0$) のみ二次転移となり、その他の温度・磁場領域はすべて一次転移となる。しかし実際には、ソリトンが形成されている部分で磁気モーメントの長さは変調し、相図は有限温度・磁場中に二次転移の領域が出現する。より正確に温度効果を捉えるためには、格子系への拡張と、各磁気モーメントの長さを一つ一つ考慮することが重要であることがここから示唆される。

補足 B 平均場方程式の導出

平均場理論では、ゆらぎの二次の項を無視する近似を行う。磁気モーメントを $\mathbf{S}_i = \langle \mathbf{S}_i \rangle + \delta \mathbf{S}_i = \mathbf{M}_\ell + \delta \mathbf{S}_i$ と、平均とゆらぎの項に分ける。ここで、 $\mathbf{M}_{\ell \pm 1} = \langle \mathbf{S}_{i \pm \hat{z}} \rangle$ である。また、 xy 平面は等方的であるので、 $\mathbf{M}_\ell = \langle \mathbf{S}_i \rangle = \langle \mathbf{S}_{i+\hat{x}} \rangle = \langle \mathbf{S}_{i+\hat{y}} \rangle$ であることを用いる。ハミルトニアン

$$\mathcal{H} = -J^\perp \sum_i \mathbf{S}_i \cdot (\mathbf{S}_{i+\hat{x}} + \mathbf{S}_{i+\hat{y}}) - J^\parallel \sum_i \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_{i+\hat{z}} - D \cdot \sum_i \mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_{i+\hat{z}} - H \cdot \sum_i \mathbf{S}_i \quad (\text{B.0.1})$$

に入れると、

$$\begin{aligned} \mathcal{H} = & -J^\perp \sum_i (\mathbf{M}_\ell + \delta \mathbf{S}_i) \cdot [(\mathbf{M}_\ell + \delta \mathbf{S}_{i+\hat{x}}) + (\mathbf{M}_\ell + \delta \mathbf{S}_{i+\hat{y}})] \\ & - J^\parallel \sum_i (\mathbf{M}_\ell + \delta \mathbf{S}_i) \cdot (\mathbf{M}_{\ell+1} + \delta \mathbf{S}_{i+\hat{z}}) \\ & - D \cdot \sum_i (\mathbf{M}_\ell + \delta \mathbf{S}_i) \times (\mathbf{M}_{\ell+1} + \delta \mathbf{S}_{i+\hat{z}}) - H \cdot \sum_i (\mathbf{M}_\ell + \delta \mathbf{S}_i) \end{aligned} \quad (\text{B.0.2})$$

となる。ここでゆらぎの二次の項 $\delta \mathbf{S}_i \cdot \delta \mathbf{S}_{i+\hat{x}}$ を無視すると、平均場方程式が得られる。

$$\begin{aligned} \mathcal{H}^{\text{MF}} = & -J^\perp \sum_i [M_\ell \cdot M_\ell + M_\ell \cdot M_\ell \\ & + \delta \mathbf{S}_i \cdot M_\ell + \delta \mathbf{S}_i \cdot M_\ell + M_\ell \cdot \delta \mathbf{S}_{i+\hat{x}} + M_\ell \cdot \delta \mathbf{S}_{i+\hat{y}}] \\ & - J^\parallel \sum_i [M_\ell \cdot M_{\ell+1} + \delta \mathbf{S}_i \cdot M_{\ell+1} + M_\ell \cdot \delta \mathbf{S}_{i+\hat{z}}] \\ & - D \cdot \sum_i [M_\ell \times M_{\ell+1} + \delta \mathbf{S}_i \times M_{\ell+1} + M_\ell \times \delta \mathbf{S}_{i+\hat{z}}] - H \cdot \sum_i (M_\ell + \delta \mathbf{S}_i) \end{aligned} \quad (\text{B.0.3})$$

ここで、 $\delta \mathbf{S}_i = \mathbf{S}_i - \mathbf{M}_\ell$ であることを用いると、

$$\begin{aligned}
\mathcal{H}^{\text{MF}} &= -J^\perp \sum_i [\mathbf{M}_\ell \cdot \mathbf{M}_\ell + \mathbf{M}_\ell \cdot \mathbf{M}_\ell \\
&\quad + (\mathbf{S}_i - \mathbf{M}_\ell) \cdot \mathbf{M}_\ell + (\mathbf{S}_i - \mathbf{M}_\ell) \cdot \mathbf{M}_\ell + \mathbf{M}_\ell \cdot (\mathbf{S}_{i+\hat{x}} - \mathbf{M}_\ell) + \mathbf{M}_\ell \cdot (\mathbf{S}_{i+\hat{y}} - \mathbf{M}_\ell)] \\
&\quad - J^\parallel \sum_i [\mathbf{M}_\ell \cdot \mathbf{M}_{\ell+1} + (\mathbf{S}_i - \mathbf{M}_\ell) \cdot \mathbf{M}_{\ell+1} + \mathbf{M}_\ell \cdot (\mathbf{S}_{i+\hat{z}} - \mathbf{M}_{\ell+1})] \\
&\quad - \mathbf{D} \cdot \sum_i [\mathbf{M}_\ell \times \mathbf{M}_{\ell+1} + (\mathbf{S}_i - \mathbf{M}_\ell) \times \mathbf{M}_{\ell+1} + \mathbf{M}_\ell \times (\mathbf{S}_{i+\hat{z}} - \mathbf{M}_{\ell+1})] \\
&\quad - \mathbf{H} \cdot \sum_i (\mathbf{M}_\ell + (\mathbf{S}_i - \mathbf{M}_\ell)) \\
&= -J^\perp \sum_i [\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{M}_\ell + \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{M}_\ell + \mathbf{M}_\ell \cdot \mathbf{S}_{i+\hat{x}} + \mathbf{M}_\ell \cdot \mathbf{S}_{i+\hat{y}} - 2\mathbf{M}_\ell \cdot \mathbf{M}_\ell \\
&\quad - J^\parallel \sum_i [\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{M}_{\ell+1} + \mathbf{M}_\ell \cdot \mathbf{S}_{i+\hat{z}} - \mathbf{M}_\ell \cdot \mathbf{M}_{\ell+1}] \\
&\quad - \mathbf{D} \cdot \sum_i [\mathbf{S}_i \times \mathbf{M}_{\ell+1} + \mathbf{M}_\ell \times \mathbf{S}_{i+\hat{z}} - \mathbf{M}_\ell \times \mathbf{M}_{\ell+1}] - \mathbf{H} \cdot \sum_i \mathbf{S}_i \\
&= -J^\perp \sum_i [4\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{M}_\ell - 2\mathbf{M}_\ell \cdot \mathbf{M}_\ell] - J^\parallel \sum_i [\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{M}_{\ell+1} + \mathbf{M}_{\ell-1} \cdot \mathbf{S}_i - \mathbf{M}_\ell \cdot \mathbf{M}_{\ell+1}] \\
&\quad - \mathbf{D} \cdot \sum_i [\mathbf{S}_i \times \mathbf{M}_{\ell+1} + \mathbf{M}_{\ell-1} \times \mathbf{S}_i - \mathbf{M}_\ell \times \mathbf{M}_{\ell+1}] - \mathbf{H} \cdot \sum_i \mathbf{S}_i \tag{B.04}
\end{aligned}$$

となる。また、DM相互作用の項は

$$\begin{aligned}
& - \mathbf{D} \cdot \sum_i [\mathbf{S}_i \times \mathbf{M}_{\ell+1} + \mathbf{M}_{\ell-1} \times \mathbf{S}_i - \mathbf{M}_\ell \times \mathbf{M}_{\ell+1}] \\
&= - \sum_i [(\mathbf{M}_{\ell+1} \times \mathbf{D} + \mathbf{D} \times \mathbf{M}_{\ell-1}) \cdot \mathbf{S}_i - \mathbf{D} \cdot \mathbf{M}_\ell \times \mathbf{M}_{\ell+1}] \\
&= - \sum_i [\mathbf{D} \times (\mathbf{M}_{\ell-1} - \mathbf{M}_{\ell+1}) \cdot \mathbf{S}_i - \frac{1}{2} \mathbf{D} \times (\mathbf{M}_{\ell-1} - \mathbf{M}_{\ell+1}) \cdot \mathbf{M}_\ell] \tag{B.05}
\end{aligned}$$

と変形できる。よって、定数項

$$C_\ell \equiv 2J^\perp \mathbf{M}_\ell \cdot \mathbf{M}_\ell + J^\parallel \mathbf{M}_\ell \cdot \mathbf{M}_{\ell+1} + \frac{1}{2} \mathbf{D} \times (\mathbf{M}_{\ell-1} - \mathbf{M}_{\ell+1}) \cdot \mathbf{M}_\ell \tag{B.06}$$

および、有効磁場

$$\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}} \equiv 4J^\perp \mathbf{M}_\ell + J^\parallel (\mathbf{M}_{\ell+1} + \mathbf{M}_{\ell-1}) + \mathbf{D} \times (\mathbf{M}_{\ell-1} - \mathbf{M}_{\ell+1}) + \mathbf{H} \tag{B.07}$$

を用いて、平均場方程式

$$\mathcal{H}_i^{\text{MF}} = -\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}} \cdot \mathbf{S}_i + C_\ell \tag{B.08}$$

を得る。また、有効磁場の表式を用いて、定数項は

$$C_\ell = \frac{\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}} - \mathbf{H}}{2} \cdot \mathbf{M}_\ell \tag{B.09}$$

と書き直すことができる。

分配関数は、

$$Z^{\text{MF}} = \prod_i \int d\Omega_i e^{-\beta \mathcal{H}_i^{\text{MF}}} = \prod_i \int d\Omega_i e^{\beta S H_i^{\text{eff}} \cos \theta_i - \beta C_i} = \prod_i \left(\frac{\sinh(\beta S H_i^{\text{eff}})}{\beta S H_i^{\text{eff}}} e^{-\beta C_i} \right) \quad (\text{B.0.10})$$

と計算される。ここで、 $H_i^{\text{eff}} = |\mathbf{H}_i^{\text{eff}}|$ である。ここから、自由エネルギー

$$\begin{aligned} F^{\text{MF}} &= -\frac{N_{2d}}{\beta} \sum_i \log \left(\frac{\sinh(\beta S H_i^{\text{eff}})}{\beta H_i^{\text{eff}}} e^{-\beta \text{Const}(i)} \right) \\ &= N_{2d} \sum_i C_i - \frac{N_{2d}}{\beta} \sum_i \log \left(\frac{\sinh(\beta S H_i^{\text{eff}})}{\beta S H_i^{\text{eff}}} \right) \end{aligned} \quad (\text{B.0.11})$$

が得られる。

補足 C モンテカルロ法と平均場近似のハイブリッド法

平均場近似の難点は、熱ゆらぎの効果を無視しているため、定量性が失われる点である。転移温度を正確に見積もるためには、やはりモンテカルロ法が有効である。しかし、磁場中カイラルらせん磁性体のモンテカルロ法は、交換モンテカルロ法などを用いても取束性が非常に悪く、計算コストが膨大となる。我々は、平均場近似とモンテカルロ法を組み合わせた手法により、定量性と安価な計算コストを両立させる、新たな計算手法を構築する。

我々が着目する CrNb_3S_6 は、らせんに垂直な二次元平面内が強く相互作用し、擬二次元的な系である。このような系では、強く相互作用する二次元平面を厳密に解くことで、定量性が回復することが期待できる。二次元平面はハイゼンベルグモデルなので、モンテカルロ法による数値計算も比較的簡単に解ける。我々は、一次元方向にのみ平均場近似を課し、二次元平面はモンテカルロ法で厳密に解く手法を、2dMC-1dMF と呼ぶことにする。

C.1 2dMC-1dMF の定式化

まずは 2dMC-1dMF の定式化を行う。らせん軸方向 (z 軸方向) に平均場近似を課した、平均場ハミルトニアンは、以下のように書ける：

$$\mathcal{H}_\ell^{\text{MF}} = -J^\perp \sum_{i_\perp} \mathbf{S}_{\ell, i_\perp} \cdot (\mathbf{S}_{\ell, i_\perp + \hat{x}} + \mathbf{S}_{\ell, i_\perp + \hat{y}}) - \mathbf{H}_\ell^{\text{eff}} \cdot \sum_{i_\perp} \mathbf{S}_{\ell, i_\perp} + C_\ell. \quad (\text{C.1.1})$$

ここで、有効磁場 $\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}}$ は、

$$\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}} = J^\parallel (\mathbf{M}_{\ell+1} + \mathbf{M}_{\ell-1}) + D(\mathbf{M}_{\ell+1} - \mathbf{M}_{\ell-1}) \times \hat{z} + H\hat{x} \quad (\text{C.1.2})$$

であり、 i_\perp に依存しない。定数項 C_ℓ は、この有効磁場 $\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}}$ を用いて、

$$C_\ell = \frac{\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}} - H\hat{x}}{2} \cdot \mathbf{M}_\ell \quad (\text{C.1.3})$$

と表せる。この平均場ハミルトニアン (C.1.1) は、磁場 $\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}}$ 中の二次元ハイゼンベルグモデルと同等である。このときの自由エネルギーは

$$F = N_z F^{2\text{d}}(0) + \sum_\ell \Delta F_\ell + \sum_\ell C_\ell, \quad (\text{C.1.4})$$

$$\Delta F_\ell = \int_0^{|\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}}|} M^{2\text{d}}(H) dH = F^{2\text{d}}(|\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}}|) - F^{2\text{d}}(0) \quad (\text{C.1.5})$$

と表せる。ここで、 $M^{2\text{d}}(H)$ および $F^{2\text{d}}(H)$ はそれぞれ、磁場 H 中の二次元ハイゼンベルグモデルの磁化と自由エネルギーである。

ゼロ磁場では、帯磁率 $\chi_h^{3\text{d}}$ は Eq. (2.2.11) と同じ形で書ける。ただし、Eq. (2.2.11) における $\chi^{2\text{d}}$ は平均場近似を課したときの二次元ハイゼンベルグモデルの帯磁率であったが、ここでは $\chi^{2\text{d}}$ は

モンテカルロ法によって厳密に求めるべき帯磁率である。ここから、ゼロ磁場における転移温度は、以下の方程式

$$1 - 2\chi^{2d}\sqrt{J^{\parallel 2} + D^2} = 0 \quad (\text{C.1.6})$$

を解くことで与えられることが分かる。この手法は Scalapino により定式化された、擬低次元モデルの一般的な解析手法である [75]。

C.2 2dMC-1dMF の数値計算の手法

効率的に平均場方程式を解くために、三次元方向に平均場近似を課したときと同様に、我々は

$$\mathbf{M}_{\ell, i_{\perp}} = S(\cos k\ell, \sin k\ell, 0), \quad k = 2\pi w/N_z \quad (\text{C.2.1})$$

で与えられる多くの初期状態を用意し、それぞれの初期状態について平均場方程式を解くことにする。ここで $w = 0, 1, 2, \dots, [w_0 + 1]$ であり、 $w_0 = N_z\alpha/(2\pi)$ はゼロ磁場のらせんの巻き数である。実際の計算では、モンテカルロシミュレーションを用いて、あらゆる温度・磁場における磁化 $|\mathbf{M}_{\ell}|$ をあらかじめ計算しておく。平均場方程式を解く際は、 $\mathbf{H}_{\ell}^{\text{eff}}$ と \mathbf{M}_{ℓ} を自己無撞着に解いていくのであるが、 $|\mathbf{M}_{\ell}|$ の値は、あらかじめ準備しておいた H - $|\mathbf{M}_{\ell}|$ 曲線を線形補間して求める。 10^5 iteration 後に、得られた磁気構造の自由エネルギーを計算し、最も小さい自由エネルギーを持つ状態を解として採用する。ここで、 ΔF_{ℓ} は、あらかじめモンテカルロ法を用いて計算しておき、 $H - \Delta F_{\ell}$ 曲線の線形補間により求める。ここで、 $F^{2d}(0)$ は温度が同じであれば磁場によらない定数であるので、このアルゴリズムの目的 (あるパラメーターにおいて得られた多くの解の自由エネルギーを比較すること) の下では考える必要のない項である。

一方、二次元ハイゼンベルグモデルのモンテカルロシミュレーションでは、熱浴法 [71, 72] と温度レプリカを用いた交換モンテカルロ法 [73] を採用した。温度レプリカは、 $T_c^{H=0}/4$ から $2T_c^{H=0}$ の温度領域で、128 個用意する。初期配置として 24 個の独立なランダム配置を用意し、それぞれについて以下の計算を行う。まずは 10^5 から 10^8 回のモンテカルロ計算を行って系を十分緩和した後、さらに 10^5 から 10^8 回サンプリングを行い、平均値をとる。得られた 24 個の平均値について、統計処理を施すことで、平均とエラーバーを評価することができる。

以下の計算結果は、 CrNb_3S_6 のパラメーターと同じ $D/J^{\parallel} = 0.16$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 8$ を用いたものである。また、システムサイズは、らせん軸方向は 2,000 サイト, 4,000 サイト、二次元平面は $(N_x, N_y) = (20, 20), (50, 50), (100, 100)$ などとったが、いずれもエラーバーはこれから提示する各図のプロットサイズよりも小さいものとなる。

C.3 転移温度の定量性の評価 ～3dMF, 2dMC-1dMF, 3dMC の比較

～

まずはゼロ磁場での転移温度の評価をし、定量性がどれほど回復されるかを調べる。図 C.1 は、転移温度の J^{\perp} 依存性を、三次元方向すべてに平均場近似を課した場合 (3dMF), 三次元カイラルらせん磁性体のモンテカルロ計算 (3dMC), および 2dMC-1dMF の三つの手法を用いて計算したものである。3dMF と 3dMC の結果は本文中で見たものであるが、平均場近似を課すことによって、転移温度が過大に評価されていることが分かる。二次元平面を厳密に解くことにより、定量性がかなり回復されていることが分かる。

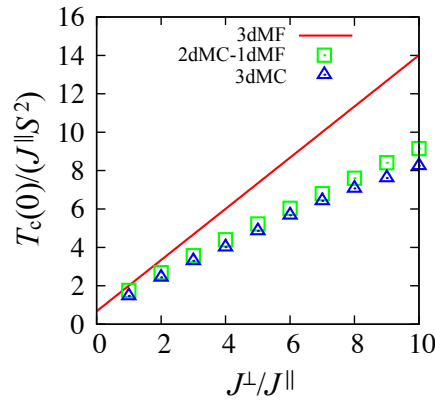


図 C.1: 3dMF, 2dMC-1dMF, 3dMC のそれぞれの手法で求めた、絶対零度における転移温度の J^\perp 依存性。

C.4 磁場中での有限温度効果 ～相図・磁化・比熱それぞれの 3dMF, 2dMC-1dMF, 3dMC の比較～

次に、磁場中のカイラルらせん磁性体について、3dMF と 2dMC-1dMF の結果を比較し、熱ゆらぎの効果を検証する。

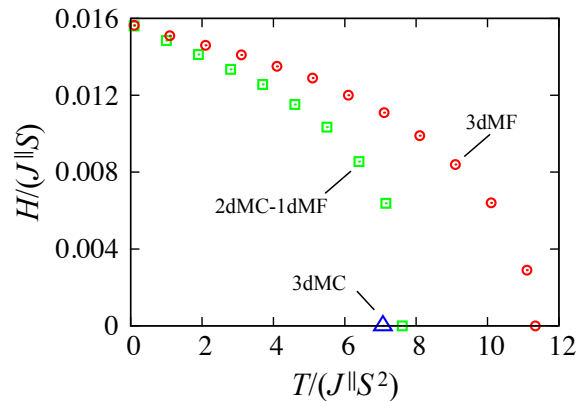


図 C.2: 3dMF, 2dMC-1dMF の手法で求めた相図。3dMC の結果はゼロ磁場でのみ有効である。

図 C.2 は、3dMF、2dMC-1dMF それぞれの手法で求めたカイラルらせん磁性体の温度-磁場相図である。絶対零度では、熱ゆらぎの効果が消失するため、臨界磁場 $H_c^{T=0}$ は 3dMF, 2dMC-1dMF らの結果は一致する。磁場中においても、平均場近似を課すと転移温度 T_c^H は過大評価されてしまうが、2dMC-1dMF の結果では、定量性を回復していることが期待できる。このとき、相図の大まかな形はほとんど変わらない。

次に、磁化の磁場依存性のグラフを示す。図 C.3 は、いくつかの温度 $T/T_c^{H=0}$ における磁化の磁場依存性を、3dMF, 2dMC-1dMF の二つの手法でとったものである。ここで、 $T_c^{H=0}$ は、3dMF, 2dMC-1dMF それぞれの、ゼロ磁場中の転移温度である。十分低温では、3dMF, 2dMC-1dMF のそれぞれの結果はほぼ一致するが、例えば $T/T_c^{H=0} = 0.72$ や 0.94 などの、比較的高温における結果を見ると磁化曲円は一致せず、臨界磁場は異なる値をとる。これはつまり、たとえ温度を

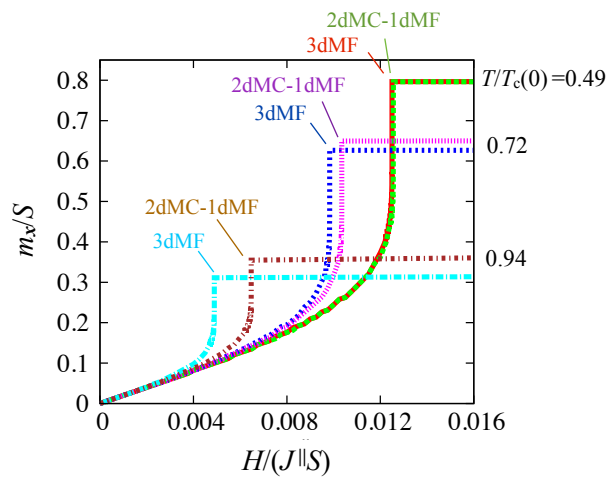


図 C.3: 3dMF, 2dMC-1dMF の手法により求めた磁化曲線。

$T_c^{H=0}$ でスケールしたとしても、相図は一致しないということの意味する。

最後に、比熱の温度依存性をいくつかの磁場について示す (図 C.4)。横軸は温度であるが、それぞれの磁場における転移温度 T_c^H で規格化し、二つの手法の転移点を一致させている。転移温度以下では、比熱は温度に対して下凸のカーブとなるが、2dMC-1dMF の結果の方が、その特徴が顕著になる。熱ゆらぎの効果は高温側でより顕著に現れ、一様相における振る舞いが二つの手法で異なる。3dMF の方は $C = 0$ に漸近するのが早く、2dMC-1dMF の結果は、ゆるやかに $C = 0$ に漸近する。また、クロスオーバーラインも、2dMC-1dMF の方が、やや高温側にシフトしているのが分かる。

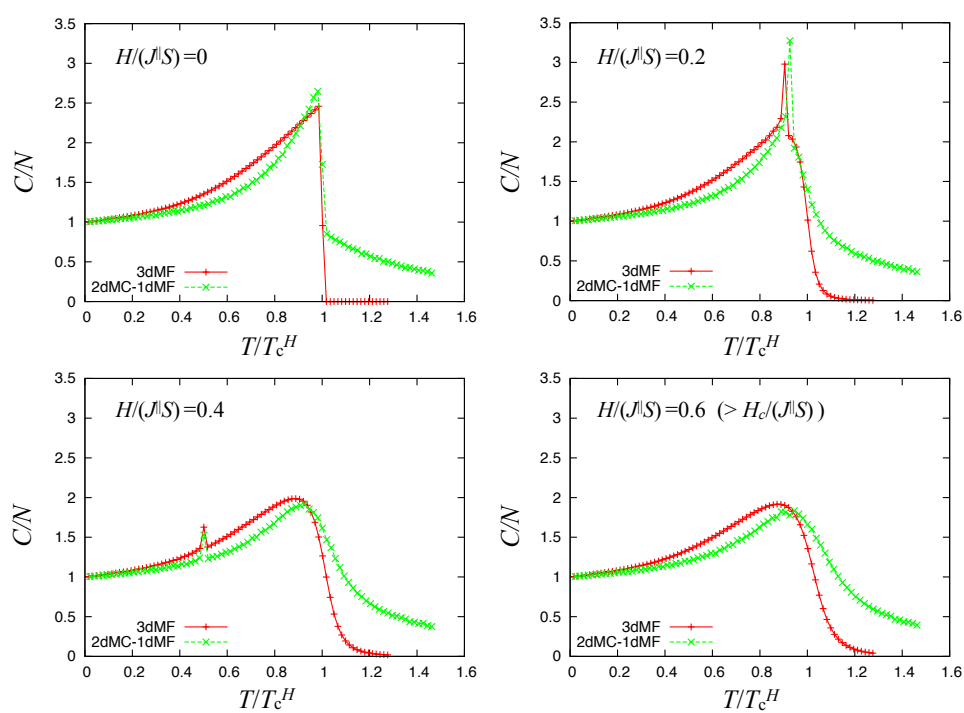


図 C.4: 3dMF, 2dMC-1dMF の手法により求めた、比熱の温度依存性。

補足 D 比熱と帯磁率の表式

D.1 一様相における比熱と帯磁率の表式

システムサイズ N の三次元ハイゼンベルグモデルのハミルトニアンとして、

$$\mathcal{H} = -J^{\parallel} \sum_i \mathbf{S}_i \cdot (\mathbf{S}_{i+\hat{x}} + \mathbf{S}_{i+\hat{y}}) - J^{\perp} \sum_i \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_{i+\hat{z}} - H \cdot \sum_i \mathbf{S}_i \cdot \hat{x} \quad (\text{D.1.1})$$

を考える。磁場は x 軸方向にかけるものとする。平均場近似を課すと、

$$\mathcal{H}^{\text{MF}} = - \sum_i \mathbf{H}_{\text{eff}} \cdot \mathbf{S}_i + (2J^{\parallel} + J^{\perp})NM^2 \quad (\text{D.1.2})$$

$$\mathbf{H}_{\text{eff}} = [(4J^{\parallel} + 2J^{\perp})M + H]\hat{x} \quad (\text{D.1.3})$$

となる。ここで系全体の磁気モーメントの熱平均を $M = |\mathbf{M}| = |\langle \mathbf{S}_i \rangle|$ と定義した。これは

$$M/S = \coth(\beta SH_{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta SH_{\text{eff}}} \equiv f(T, H_{\text{eff}}(M, H)) \quad (\text{D.1.4})$$

で与えられる。ただし、 $\beta = 1/T$ である。エネルギーは平均場ハミルトニアンの熱平均で表され、

$$E = \langle \mathcal{H}^{\text{MF}} \rangle = -(2J^{\parallel} + J^{\perp})NM^2 + HNM \quad (\text{D.1.5})$$

である。これの温度微分が比熱となる。比熱を C とおくと、

$$C = \frac{dE}{dT} = -(2J^{\parallel} + J^{\perp})N \frac{dM}{dT} + HN \frac{dM}{dT} \quad (\text{D.1.6})$$

となる。ここで、

$$\begin{aligned} \frac{dM}{dT} &= \frac{d}{dT} f(T, H_{\text{eff}}(M, H)) = \frac{\partial f}{\partial T} + (4J^{\parallel} + 2J^{\perp}) \frac{\partial f}{\partial H_{\text{eff}}} \frac{dM}{dT} \\ \Rightarrow \frac{dM}{dT} &= \frac{\frac{\partial f}{\partial T}}{1 - (4J^{\parallel} + 2J^{\perp}) \frac{\partial f}{\partial H_{\text{eff}}}} \end{aligned} \quad (\text{D.1.7})$$

および、

$$\frac{\partial f}{\partial T} = -\frac{1}{T^2} \left[-\frac{SH_{\text{eff}}}{\sinh^2(\beta SH_{\text{eff}})} + \frac{1}{\beta^2 SH_{\text{eff}}} \right] = \frac{\beta^2 SH_{\text{eff}}}{\sinh^2(\beta SH_{\text{eff}})} - \frac{1}{SH_{\text{eff}}} \quad (\text{D.1.8})$$

$$\frac{\partial f}{\partial H_{\text{eff}}} = -\frac{\beta S}{\sinh^2(\beta SH_{\text{eff}})} + \frac{1}{\beta SH_{\text{eff}}^2} \quad (\text{D.1.9})$$

である。

一方、帯磁率は磁化の磁場微分で計算できる。これは、

$$\chi = \frac{dM}{dH} = \frac{d}{dH} f(T, H_{\text{eff}}(M, H)) = \frac{\partial f}{\partial H_{\text{eff}}} \left[\frac{\partial H_{\text{eff}}}{\partial H} + \frac{\partial H_{\text{eff}}}{\partial M} \frac{dM}{dH} \right] = \frac{\partial f}{\partial H_{\text{eff}}} \left[1 + 6J \frac{dM}{dH} \right] \quad (\text{D.1.10})$$

より

$$\chi = \frac{dM}{dH} = \frac{\frac{\partial f}{\partial H_{\text{eff}}}}{1 - 6J \frac{\partial f}{\partial H_{\text{eff}}}} \quad (\text{D.1.11})$$

と表される。

D.2 秩序相内の比熱の解析的な表式

一様相においては、平均場近似の範囲では DM 相互作用が効かないため、ハイゼンベルグモデルから比較的簡単に比熱の表式を導出することができたが、秩序相内の比熱の振る舞いを調べるためには、各層 l における磁気モーメントを個別に考えなければならない。ここでは、カイラルらせん磁性体の比熱の解析的な表式を導出し、エネルギーを数値微分した結果と解析的な結果との比較から、無限系における比熱の振る舞いの評価を行う。

D.2.1 準備

ここで、必要な計算ををまとめておく。

定数項の磁化微分

有効外場が

$$\mathbf{H}_{\ell-1}^{\text{eff}} = 4J^{\perp} \mathbf{M}_{\ell-1} + J^{\parallel} (\mathbf{M}_{\ell} + \mathbf{M}_{\ell-2}) + D(\mathbf{M}_{\ell} - \mathbf{M}_{\ell-2}) \times \hat{z} + \mathbf{H} \quad (\text{D.2.1})$$

$$\mathbf{H}_{\ell}^{\text{eff}} = 4J^{\perp} \mathbf{M}_{\ell} + J^{\parallel} (\mathbf{M}_{\ell+1} + \mathbf{M}_{\ell-1}) + D(\mathbf{M}_{\ell+1} - \mathbf{M}_{\ell-1}) \times \hat{z} + \mathbf{H} \quad (\text{D.2.2})$$

$$\mathbf{H}_{\ell+1}^{\text{eff}} = 4J^{\perp} \mathbf{M}_{\ell+1} + J^{\parallel} (\mathbf{M}_{\ell+2} + \mathbf{M}_{\ell}) + D(\mathbf{M}_{\ell+2} - \mathbf{M}_{\ell}) \times \hat{z} + \mathbf{H} \quad (\text{D.2.3})$$

とかけ、DM 相互作用の項が $D(\mathbf{M}_{\ell} \times \hat{z}) \cdot \mathbf{M}_{\ell-1} = D\mathbf{M}_{\ell} \cdot (\hat{z} \times \mathbf{M}_{\ell-1})$ となること等から、

$$\frac{\partial}{\partial \mathbf{M}_{\ell}} \mathbf{H}_{\ell-1}^{\text{eff}} \cdot \mathbf{M}_{\ell-1} = J^{\parallel} \mathbf{M}_{\ell-1} - D\mathbf{M}_{\ell-1} \times \hat{z} \quad (\text{D.2.4})$$

$$\frac{\partial}{\partial \mathbf{M}_{\ell}} \mathbf{H}_{\ell}^{\text{eff}} \cdot \mathbf{M}_{\ell} = \mathbf{H}_{\ell}^{\text{eff}} + 4J^{\perp} \mathbf{M}_{\ell} \quad (\text{D.2.5})$$

$$\frac{\partial}{\partial \mathbf{M}_{\ell}} \mathbf{H}_{\ell+1}^{\text{eff}} \cdot \mathbf{M}_{\ell+1} = J^{\parallel} \mathbf{M}_{\ell+1} + D\mathbf{M}_{\ell+1} \times \hat{z} \quad (\text{D.2.6})$$

を得る。ここから、定数項

$$C_{\ell-1} = \frac{(\mathbf{H}_{\ell-1}^{\text{eff}} - \mathbf{H})}{2} \cdot \mathbf{M}_{\ell-1} \quad (\text{D.2.7})$$

$$C_{\ell} = \frac{(\mathbf{H}_{\ell}^{\text{eff}} - \mathbf{H})}{2} \cdot \mathbf{M}_{\ell} \quad (\text{D.2.8})$$

$$C_{\ell+1} = \frac{(\mathbf{H}_{\ell+1}^{\text{eff}} - \mathbf{H})}{2} \cdot \mathbf{M}_{\ell+1} \quad (\text{D.2.9})$$

らの磁化微分は、

$$\frac{\partial}{\partial \mathbf{M}_\ell} C_{\ell-1} = \frac{\partial}{\partial \mathbf{M}_\ell} \frac{(\mathbf{H}_{\ell-1}^{\text{eff}} \cdot \mathbf{M}_{\ell-1} - \mathbf{H} \cdot \mathbf{M}_{\ell-1})}{2} = \frac{J^\parallel \mathbf{M}_{\ell-1} - D \mathbf{M}_{\ell-1} \times \hat{z}}{2} \quad (\text{D.2.10})$$

$$\frac{\partial}{\partial \mathbf{M}_\ell} C_\ell = \frac{\partial}{\partial \mathbf{M}_\ell} \frac{(\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}} \cdot \mathbf{M}_\ell - \mathbf{H} \cdot \mathbf{M}_\ell)}{2} = \frac{\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}} + 4J^\perp \mathbf{M}_\ell - \mathbf{H}}{2} \quad (\text{D.2.11})$$

$$\frac{\partial}{\partial \mathbf{M}_\ell} C_{\ell+1} = \frac{\partial}{\partial \mathbf{M}_\ell} \frac{(\mathbf{H}_{\ell+1}^{\text{eff}} \cdot \mathbf{M}_{\ell+1} - \mathbf{H} \cdot \mathbf{M}_{\ell+1})}{2} = \frac{J^\parallel \mathbf{M}_{\ell+1} + D \mathbf{M}_{\ell+1} \times \hat{z}}{2} \quad (\text{D.2.12})$$

と求まり、

$$\frac{\partial}{\partial \mathbf{M}_\ell} C_{\ell-1} + \frac{\partial}{\partial \mathbf{M}_\ell} C_\ell + \frac{\partial}{\partial \mathbf{M}_\ell} C_{\ell+1} = \mathbf{H}_\ell^{\text{eff}} - \mathbf{H} \quad (\text{D.2.13})$$

を得る。

有効磁場の大きさの磁化微分

有効外場の成分を書き下すと、

$$\begin{aligned} \mathbf{H}_\ell^{\text{eff}} &= 4J^\perp \mathbf{M}_\ell + J^\parallel (\mathbf{M}_{\ell+1} + \mathbf{M}_{\ell-1}) + D(\mathbf{M}_{\ell+1} - \mathbf{M}_{\ell-1}) \times \hat{z} + \mathbf{H} \\ &= \begin{pmatrix} 4J^\perp M_\ell^x + J^\parallel (M_{\ell+1}^x + M_{\ell-1}^x) + D(M_{\ell+1}^y - M_{\ell-1}^y) + H_x \\ 4J^\perp M_\ell^y + J^\parallel (M_{\ell+1}^y + M_{\ell-1}^y) - D(M_{\ell+1}^x - M_{\ell-1}^x) \\ 4J^\perp M_\ell^z + J^\parallel (M_{\ell+1}^z + M_{\ell-1}^z) \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (\text{D.2.14})$$

である。有効磁場の大きさ H_ℓ^{eff} は、これらを用いて

$$H_\ell^{\text{eff}} = \sqrt{(H_\ell^{\text{eff}})_x^2 + (H_\ell^{\text{eff}})_y^2 + (H_\ell^{\text{eff}})_z^2} \quad (\text{D.2.15})$$

と書けることから、

$$\frac{\partial H_\ell^{\text{eff}}}{\partial M_\ell^x} = \frac{1}{2} \frac{2(H_\ell^{\text{eff}})_x 4J^\perp}{\sqrt{(H_\ell^{\text{eff}})_x^2 + (H_\ell^{\text{eff}})_y^2 + (H_\ell^{\text{eff}})_z^2}} = \frac{4J^\perp (H_\ell^{\text{eff}})_x}{H_\ell^{\text{eff}}} \quad (\text{D.2.16})$$

$$\frac{\partial H_\ell^{\text{eff}}}{\partial M_\ell^y} = \frac{4J^\perp (H_\ell^{\text{eff}})_y}{H_\ell^{\text{eff}}} \quad (\text{D.2.17})$$

$$\frac{\partial H_\ell^{\text{eff}}}{\partial M_\ell^z} = \frac{4J^\perp (H_\ell^{\text{eff}})_z}{H_\ell^{\text{eff}}} \quad (\text{D.2.18})$$

より、有効磁場の \mathbf{M}_ℓ 微分は

$$\frac{\partial H_\ell^{\text{eff}}}{\partial \mathbf{M}_\ell} = 4J^\perp \frac{\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}}}{H_\ell^{\text{eff}}} \quad (\text{D.2.19})$$

となる。同様に、

$$\begin{aligned} \mathbf{H}_{\ell-1}^{\text{eff}} &= 4J^\perp \mathbf{M}_{\ell-1} + J^\parallel (\mathbf{M}_\ell + \mathbf{M}_{\ell-2}) + D(\mathbf{M}_\ell - \mathbf{M}_{\ell-2}) \times \hat{z} + \mathbf{H} \\ &= \begin{pmatrix} 4J^\perp M_{\ell-1}^x + J^\parallel (M_\ell^x + M_{\ell-2}^x) + D(M_\ell^y - M_{\ell-2}^y) + H \\ 4J^\perp M_{\ell-1}^y + J^\parallel (M_\ell^y + M_{\ell-2}^y) - D(M_\ell^x - M_{\ell-2}^x) \\ 4J^\perp M_{\ell-1}^z + J^\parallel (M_\ell^z + M_{\ell-2}^z) \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (\text{D.2.20})$$

より

$$\frac{\partial H_{\ell-1}^{\text{eff}}}{\partial M_\ell^x} = \frac{J^\parallel (H_{\ell-1}^{\text{eff}})_x - D(H_{\ell-1}^{\text{eff}})_y}{H_{\ell-1}^{\text{eff}}} \quad (\text{D.2.21})$$

$$\frac{\partial H_{\ell-1}^{\text{eff}}}{\partial M_\ell^y} = \frac{J^\parallel (H_{\ell-1}^{\text{eff}})_y + D(H_{\ell-1}^{\text{eff}})_x}{H_{\ell-1}^{\text{eff}}} \quad (\text{D.2.22})$$

$$\frac{\partial H_{\ell-1}^{\text{eff}}}{\partial M_\ell^z} = \frac{J^\parallel (H_{\ell-1}^{\text{eff}})_z}{H_{\ell-1}^{\text{eff}}} \quad (\text{D.2.23})$$

また、

$$\begin{aligned} \mathbf{H}_{\ell+1}^{\text{eff}} &= 4J^\perp \mathbf{M}_{\ell+1} + J^\parallel (\mathbf{M}_{\ell+2} + \mathbf{M}_\ell) + D(\mathbf{M}_{\ell+2} - \mathbf{M}_\ell) \times \hat{z} + \mathbf{H} \\ &= \begin{pmatrix} 4J^\perp M_{\ell+1}^x + J^\parallel (M_{\ell+2}^x + M_\ell^x) + D(M_{\ell+2}^y - M_\ell^y) + H \\ 4J^\perp M_{\ell+1}^y + J^\parallel (M_{\ell+2}^y + M_\ell^y) - D(M_{\ell+2}^x - M_\ell^x) \\ 4J^\perp M_{\ell+1}^z + J^\parallel (M_{\ell+2}^z + M_\ell^z) \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (\text{D.2.24})$$

より

$$\frac{\partial H_{\ell+1}^{\text{eff}}}{\partial M_\ell^x} = \frac{J^\parallel (H_{\ell+1}^{\text{eff}})_x + D(H_{\ell+1}^{\text{eff}})_y}{H_{\ell+1}^{\text{eff}}} \quad (\text{D.2.25})$$

$$\frac{\partial H_{\ell+1}^{\text{eff}}}{\partial M_\ell^y} = \frac{J^\parallel (H_{\ell+1}^{\text{eff}})_y - D(H_{\ell+1}^{\text{eff}})_x}{H_{\ell+1}^{\text{eff}}} \quad (\text{D.2.26})$$

$$\frac{\partial H_{\ell+1}^{\text{eff}}}{\partial M_\ell^z} = \frac{J^\parallel (H_{\ell+1}^{\text{eff}})_z}{H_{\ell+1}^{\text{eff}}} \quad (\text{D.2.27})$$

であるから、以上をまとめると、

$$\frac{\partial H_{\ell-1}^{\text{eff}}}{\partial \mathbf{M}_\ell} = \frac{J^\parallel \mathbf{H}_{\ell-1}^{\text{eff}} - D\mathbf{H}_{\ell-1}^{\text{eff}} \times \hat{z}}{H_{\ell-1}^{\text{eff}}}, \quad \frac{\partial H_{\ell+1}^{\text{eff}}}{\partial \mathbf{M}_\ell} = \frac{J^\parallel \mathbf{H}_{\ell+1}^{\text{eff}} + D\mathbf{H}_{\ell+1}^{\text{eff}} \times \hat{z}}{H_{\ell+1}^{\text{eff}}} \quad (\text{D.2.28})$$

を得る。

D.2.2 比熱の解析的な表式

平均場近似を課した、三次元カイラルらせん磁性体のエネルギーは、平均場ハミルトニアン
の平均として表せる。単位体積あたりのエネルギーは

$$e \equiv E/N = \frac{1}{N_z} \sum_{\ell} \left(-\mathbf{H}_{\ell}^{\text{eff}} \cdot \mathbf{M}_{\ell} + C_{\ell} \right) \quad (\text{D.2.29})$$

と書ける。比熱は、これの温度微分で与えられる：

$$c = \frac{\partial e}{\partial T} \quad (\text{D.2.30})$$

ここで、エネルギーは磁化 \mathbf{M}_{ℓ} の関数として書けるので、

$$c = \sum_{\ell} \frac{\partial e}{\partial \mathbf{M}_{\ell}} \cdot \frac{d\mathbf{M}_{\ell}}{dT} \quad (\text{D.2.31})$$

によって求められる。

各微分の計算

1. エネルギーの磁化微分

まず、エネルギーの磁化微分

$$\begin{aligned} \frac{\partial e}{\partial \mathbf{M}_{\ell}} &= \frac{1}{N_z} \frac{\partial}{\partial \mathbf{M}_{\ell}} \left[-\sum_{\ell'} \mathbf{H}_{\ell'}^{\text{eff}} \cdot \mathbf{M}_{\ell'} + \sum_{\ell'} C_{\ell'} \right] \\ &= \frac{1}{N_z} \frac{\partial}{\partial \mathbf{M}_{\ell}} \left[-\mathbf{H}_{\ell-1}^{\text{eff}} \cdot \mathbf{M}_{\ell-1} - \mathbf{H}_{\ell}^{\text{eff}} \cdot \mathbf{M}_{\ell} - \mathbf{H}_{\ell+1}^{\text{eff}} \cdot \mathbf{M}_{\ell+1} + C_{\ell-1} + C_{\ell} + C_{\ell+1} \right] \end{aligned} \quad (\text{D.2.32})$$

を求める。ここで、Appendix D.2.1 より、

$$\frac{\partial}{\partial \mathbf{M}_{\ell}} \mathbf{H}_{\ell-1}^{\text{eff}} \cdot \mathbf{M}_{\ell-1} = J^{\parallel} \mathbf{M}_{\ell-1} - D\mathbf{M}_{\ell-1} \times \hat{z} \quad (\text{D.2.33})$$

$$\frac{\partial}{\partial \mathbf{M}_{\ell}} \mathbf{H}_{\ell}^{\text{eff}} \cdot \mathbf{M}_{\ell} = \mathbf{H}_{\ell}^{\text{eff}} + 4J^{\perp} \mathbf{M}_{\ell} \quad (\text{D.2.34})$$

$$\frac{\partial}{\partial \mathbf{M}_{\ell}} \mathbf{H}_{\ell+1}^{\text{eff}} \cdot \mathbf{M}_{\ell+1} = J^{\parallel} \mathbf{M}_{\ell+1} + D\mathbf{M}_{\ell+1} \times \hat{z} \quad (\text{D.2.35})$$

$$\frac{\partial}{\partial \mathbf{M}_{\ell}} \mathbf{H}_{\ell-1}^{\text{eff}} \cdot \mathbf{M}_{\ell-1} + \frac{\partial}{\partial \mathbf{M}_{\ell}} \mathbf{H}_{\ell}^{\text{eff}} \cdot \mathbf{M}_{\ell} + \frac{\partial}{\partial \mathbf{M}_{\ell}} \mathbf{H}_{\ell+1}^{\text{eff}} \cdot \mathbf{M}_{\ell+1} = 2\mathbf{H}_{\ell}^{\text{eff}} - \mathbf{H} \quad (\text{D.2.36})$$

および

$$\frac{\partial}{\partial \mathbf{M}_{\ell}} C_{\ell-1} + \frac{\partial}{\partial \mathbf{M}_{\ell}} C_{\ell} + \frac{\partial}{\partial \mathbf{M}_{\ell}} C_{\ell+1} = \mathbf{H}_{\ell}^{\text{eff}} - \mathbf{H} \quad (\text{D.2.37})$$

であることから、

$$\frac{\partial e}{\partial \mathbf{M}_{\ell}} = \frac{1}{N_z} \left[-(2\mathbf{H}_{\ell}^{\text{eff}} - \mathbf{H}) + \mathbf{H}_{\ell}^{\text{eff}} - \mathbf{H} \right] = -\frac{1}{N_z} \mathbf{H}_{\ell}^{\text{eff}} \quad (\text{D.2.38})$$

を得る。

2. 磁化の温度微分

次に磁化の温度微分を求める。磁化は、 $M_\ell = f(T, M_{\ell-1}, M_\ell, M_{\ell+1})$ の様な関数で書けることから、磁化の温度微分は

$$\frac{dM_\ell}{dT} = \frac{\partial f}{\partial T} + \frac{\partial f}{\partial M_{\ell-1}} \cdot \frac{dM_{\ell-1}}{dT} + \frac{\partial f}{\partial M_\ell} \cdot \frac{dM_\ell}{dT} + \frac{\partial f}{\partial M_{\ell+1}} \cdot \frac{dM_{\ell+1}}{dT} \quad (\text{D.2.39})$$

のように分離できる。ここで $\mathbf{x}_\ell \equiv \partial M_\ell / \partial T$ とおき、 $(M_{\ell-1}, M_\ell, M_{\ell+1})$ に対する関数 f の値を g_ℓ とおく。すると、

$$\mathbf{x}_\ell = \frac{\partial g_\ell}{\partial T} + \frac{\partial g_\ell}{\partial M_{\ell-1}} \cdot \mathbf{x}_{\ell-1} + \frac{\partial g_\ell}{\partial M_\ell} \cdot \mathbf{x}_\ell + \frac{\partial g_\ell}{\partial M_{\ell+1}} \cdot \mathbf{x}_{\ell+1} \quad (\text{D.2.40})$$

であり、すべての ℓ に対して考えると

$$\begin{pmatrix} \mathbf{x}_1 \\ \vdots \\ \mathbf{x}_{\ell-1} \\ \mathbf{x}_\ell \\ \mathbf{x}_{\ell+1} \\ \vdots \\ \mathbf{x}_{N_z} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{\partial g_1}{\partial T} \\ \vdots \\ \frac{\partial g_{\ell-1}}{\partial T} \\ \frac{\partial g_\ell}{\partial T} \\ \frac{\partial g_{\ell+1}}{\partial T} \\ \vdots \\ \frac{\partial g_{N_z}}{\partial T} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \frac{\partial g_1}{\partial M_1} & \frac{\partial g_1}{\partial M_2} & 0 & \cdots & \cdots & 0 & \frac{\partial g_1}{\partial M_{N_z}} \\ \frac{\partial g_2}{\partial M_1} & \frac{\partial g_2}{\partial M_2} & \frac{\partial g_2}{\partial M_3} & 0 & \cdots & \cdots & 0 \\ \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\ 0 & \cdots & \frac{\partial g_\ell}{\partial M_{\ell-1}} & \frac{\partial g_\ell}{\partial M_\ell} & \frac{\partial g_\ell}{\partial M_{\ell+1}} & \cdots & 0 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\ \frac{\partial g_{N_z}}{\partial M_1} & 0 & \cdots & \cdots & 0 & \frac{\partial g_{N_z}}{\partial M_{N_z-1}} & \frac{\partial g_{N_z}}{\partial M_{N_z}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathbf{x}_1 \\ \vdots \\ \mathbf{x}_{\ell-1} \\ \mathbf{x}_\ell \\ \mathbf{x}_{\ell+1} \\ \vdots \\ \mathbf{x}_{N_z} \end{pmatrix} \quad (\text{D.2.41})$$

という、連立一次方程式の形となる。

ここで、

$$\begin{aligned} \frac{\partial g_\ell}{\partial T} &= \frac{\partial \beta}{\partial T} \frac{\partial}{\partial \beta} \left[S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right] \hat{H}_\ell^{\text{eff}} \\ &= -\beta^2 \left[-\frac{S^2 H_\ell^{\text{eff}}}{\sinh^2(\beta S H_\ell^{\text{eff}})} + \frac{H_\ell^{\text{eff}}}{(\beta H_\ell^{\text{eff}})^2} \right] \hat{H}_\ell^{\text{eff}} \\ &= \left[\frac{\beta^2 S^2 H_\ell^{\text{eff}}}{\sinh^2(\beta S H_\ell^{\text{eff}})} - \frac{1}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] \hat{H}_\ell^{\text{eff}} \end{aligned} \quad (\text{D.2.42})$$

である。我々は、

$$\frac{\partial g_\ell}{\partial M_\ell}, \quad \frac{\partial g_\ell}{\partial M_{\ell-1}}, \quad \frac{\partial g_\ell}{\partial M_{\ell+1}} \quad (\text{D.2.43})$$

らの行列の成分を求める必要がある。

まずは、行列

$$\frac{\partial \mathbf{g}_\ell}{\partial \mathbf{M}_\ell} = \begin{pmatrix} \frac{\partial g_\ell^x}{\partial M_\ell^x} & \frac{\partial g_\ell^x}{\partial M_\ell^y} & \frac{\partial g_\ell^x}{\partial M_\ell^z} \\ \frac{\partial g_\ell^y}{\partial M_\ell^x} & \frac{\partial g_\ell^y}{\partial M_\ell^y} & \frac{\partial g_\ell^y}{\partial M_\ell^z} \\ \frac{\partial g_\ell^z}{\partial M_\ell^x} & \frac{\partial g_\ell^z}{\partial M_\ell^y} & \frac{\partial g_\ell^z}{\partial M_\ell^z} \end{pmatrix} \quad (\text{D.2.44})$$

の成分を求める。ここで、 \mathbf{g}_ℓ は

$$\mathbf{g}_\ell = \left[S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right] \frac{\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}}}{H_\ell^{\text{eff}}} = \left[S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right] \frac{1}{H_\ell^{\text{eff}}} \begin{pmatrix} (H_\ell^{\text{eff}})_x \\ (H_\ell^{\text{eff}})_y \\ (H_\ell^{\text{eff}})_z \end{pmatrix} \quad (\text{D.2.45})$$

である。9つの成分を一つずつ計算すると、

(x,x) 成分

$$\begin{aligned} \frac{\partial g_\ell^x}{\partial M_\ell^x} &= \frac{\partial}{\partial M_\ell^x} \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{(H_\ell^{\text{eff}})_x}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] \\ &= (H_\ell^{\text{eff}})_x \frac{\partial}{\partial M_\ell^x} \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{1}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] + \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{1}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] \frac{\partial}{\partial M_\ell^x} (H_\ell^{\text{eff}})_x \\ &= (H_\ell^{\text{eff}})_x \frac{\partial H_\ell^{\text{eff}}}{\partial M_\ell^x} \frac{\partial}{\partial H_\ell^{\text{eff}}} \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{1}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] + 4J^\perp \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{1}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] \\ &= (H_\ell^{\text{eff}})_x \frac{4J^\perp (H_\ell^{\text{eff}})_x}{H_\ell^{\text{eff}}} \left[-\frac{\beta S^2}{H_\ell^{\text{eff}} \sinh^2(\beta S H_\ell^{\text{eff}})} - \frac{S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}})}{H_\ell^{\text{eff}}} + \frac{2}{\beta (H_\ell^{\text{eff}})^3} \right] \\ &\quad + 4J^\perp \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{1}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] \\ &= \frac{4J^\perp (H_\ell^{\text{eff}})_x^2}{(H_\ell^{\text{eff}})^2} \left[-\frac{\beta S^2}{\sinh^2(\beta S H_\ell^{\text{eff}})} - \frac{S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}})}{H_\ell^{\text{eff}}} + \frac{2}{\beta (H_\ell^{\text{eff}})^2} \right] + \frac{4J^\perp}{H_\ell^{\text{eff}}} \left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \end{aligned} \quad (\text{D.2.46})$$

(x,y) 成分

$$\begin{aligned} \frac{\partial g_\ell^x}{\partial M_\ell^y} &= \frac{\partial}{\partial M_\ell^y} \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{(H_\ell^{\text{eff}})_x}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] \\ &= (H_\ell^{\text{eff}})_x \frac{\partial}{\partial M_\ell^y} \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{1}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] \\ &= \frac{4J^\perp (H_\ell^{\text{eff}})_x (H_\ell^{\text{eff}})_y}{(H_\ell^{\text{eff}})^2} \left[-\frac{\beta S^2}{\sinh^2(\beta S H_\ell^{\text{eff}})} - \frac{S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}})}{H_\ell^{\text{eff}}} + \frac{2}{\beta (H_\ell^{\text{eff}})^2} \right] \end{aligned} \quad (\text{D.2.47})$$

(x,z) 成分

$$\begin{aligned} \frac{\partial g_\ell^x}{\partial M_\ell^z} &= \frac{\partial}{\partial M_\ell^z} \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{(H_\ell^{\text{eff}})_x}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] \\ &= (H_\ell^{\text{eff}})_x \frac{\partial}{\partial M_\ell^z} \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{1}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] \\ &= \frac{4J^\perp (H_\ell^{\text{eff}})_x (H_\ell^{\text{eff}})_z}{(H_\ell^{\text{eff}})^2} \left[-\frac{\beta S^2}{\sinh^2(\beta S H_\ell^{\text{eff}})} - \frac{S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}})}{H_\ell^{\text{eff}}} + \frac{2}{\beta (H_\ell^{\text{eff}})^2} \right] \end{aligned} \quad (\text{D.2.48})$$

(y,x) 成分

$$\begin{aligned}
\frac{\partial g_\ell^y}{\partial M_\ell^x} &= \frac{\partial}{\partial M_\ell^x} \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{(H_\ell^{\text{eff}})_y}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] \\
&= (H_\ell^{\text{eff}})_y \frac{\partial}{\partial M_\ell^x} \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{1}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] \\
&= \frac{4J^\perp (H_\ell^{\text{eff}})_x (H_\ell^{\text{eff}})_y}{(H_\ell^{\text{eff}})^2} \left[-\frac{\beta S^2}{\sinh^2(\beta S H_\ell^{\text{eff}})} - \frac{S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}})}{H_\ell^{\text{eff}}} + \frac{2}{\beta (H_\ell^{\text{eff}})^2} \right]
\end{aligned} \tag{D.2.49}$$

(y,y) 成分

$$\begin{aligned}
\frac{\partial g_\ell^y}{\partial M_\ell^y} &= \frac{\partial}{\partial M_\ell^y} \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{(H_\ell^{\text{eff}})_y}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] \\
&= (H_\ell^{\text{eff}})_y \frac{\partial}{\partial M_\ell^y} \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{1}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] + \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{1}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] \frac{\partial}{\partial M_\ell^y} (H_\ell^{\text{eff}})_y \\
&= (H_\ell^{\text{eff}})_y \frac{\partial H_\ell^{\text{eff}}}{\partial M_\ell^y} \frac{\partial}{\partial H_\ell^{\text{eff}}} \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{1}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] + 4J^\perp \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{1}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] \\
&= (H_\ell^{\text{eff}})_y \frac{4J^\perp (H_\ell^{\text{eff}})_y}{H_\ell^{\text{eff}}} \left[-\frac{\beta S^2}{H_\ell^{\text{eff}} \sinh^2(\beta S H_\ell^{\text{eff}})} - \frac{S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}})}{H_\ell^{\text{eff}}} + \frac{2}{\beta (H_\ell^{\text{eff}})^3} \right] \\
&\quad + 4J^\perp \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{1}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] \\
&= \frac{4J^\perp (H_\ell^{\text{eff}})_y^2}{(H_\ell^{\text{eff}})^2} \left[-\frac{\beta S^2}{\sinh^2(\beta S H_\ell^{\text{eff}})} - \frac{S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}})}{H_\ell^{\text{eff}}} + \frac{2}{\beta (H_\ell^{\text{eff}})^2} \right] + \frac{4J^\perp}{H_\ell^{\text{eff}}} \left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right)
\end{aligned} \tag{D.2.50}$$

(y,z) 成分

$$\begin{aligned}
\frac{\partial g_\ell^y}{\partial M_\ell^z} &= \frac{\partial}{\partial M_\ell^z} \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{(H_\ell^{\text{eff}})_y}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] \\
&= (H_\ell^{\text{eff}})_y \frac{\partial}{\partial M_\ell^z} \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{1}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] \\
&= \frac{4J^\perp (H_\ell^{\text{eff}})_y (H_\ell^{\text{eff}})_z}{(H_\ell^{\text{eff}})^2} \left[-\frac{\beta S^2}{\sinh^2(\beta S H_\ell^{\text{eff}})} - \frac{S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}})}{H_\ell^{\text{eff}}} + \frac{2}{\beta (H_\ell^{\text{eff}})^2} \right]
\end{aligned} \tag{D.2.51}$$

(z,x) 成分

$$\begin{aligned}
\frac{\partial g_\ell^z}{\partial M_\ell^x} &= \frac{\partial}{\partial M_\ell^x} \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{(H_\ell^{\text{eff}})_z}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] \\
&= (H_\ell^{\text{eff}})_z \frac{\partial}{\partial M_\ell^x} \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{1}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] \\
&= \frac{4J^\perp (H_\ell^{\text{eff}})_z (H_\ell^{\text{eff}})_x}{(H_\ell^{\text{eff}})^2} \left[-\frac{\beta S^2}{\sinh^2(\beta S H_\ell^{\text{eff}})} - \frac{S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}})}{H_\ell^{\text{eff}}} + \frac{2}{\beta (H_\ell^{\text{eff}})^2} \right]
\end{aligned} \tag{D.2.52}$$

(z,y) 成分

$$\begin{aligned}
\frac{\partial g_\ell^z}{\partial M_\ell^y} &= \frac{\partial}{\partial M_\ell^y} \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{(H_\ell^{\text{eff}})_z}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] \\
&= (H_\ell^{\text{eff}})_z \frac{\partial}{\partial M_\ell^y} \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{1}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] \\
&= \frac{4J^\perp (H_\ell^{\text{eff}})_y (H_\ell^{\text{eff}})_z}{(H_\ell^{\text{eff}})^2} \left[-\frac{\beta S^2}{\sinh^2(\beta S H_\ell^{\text{eff}})} - \frac{S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}})}{H_\ell^{\text{eff}}} + \frac{2}{\beta (H_\ell^{\text{eff}})^2} \right]
\end{aligned} \tag{D.2.53}$$

(z,z) 成分

$$\begin{aligned}
\frac{\partial g_\ell^z}{\partial M_\ell^z} &= \frac{\partial}{\partial M_\ell^z} \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{(H_\ell^{\text{eff}})_z}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] \\
&= (H_\ell^{\text{eff}})_z \frac{\partial}{\partial M_\ell^z} \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{1}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] + \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{1}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] \frac{\partial}{\partial M_\ell^z} (H_\ell^{\text{eff}})_z \\
&= (H_\ell^{\text{eff}})_z \frac{\partial H_\ell^{\text{eff}}}{\partial M_\ell^z} \frac{\partial}{\partial H_\ell^{\text{eff}}} \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{1}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] + 4J^\perp \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{1}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] \\
&= (H_\ell^{\text{eff}})_z \frac{4J^\perp (H_\ell^{\text{eff}})_z}{H_\ell^{\text{eff}}} \left[-\frac{\beta S^2}{H_\ell^{\text{eff}} \sinh^2(\beta S H_\ell^{\text{eff}})} - \frac{S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}})}{H_\ell^{\text{eff}}} + \frac{2}{\beta (H_\ell^{\text{eff}})^3} \right] \\
&\quad + 4J^\perp \left[\left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \frac{1}{H_\ell^{\text{eff}}} \right] \\
&= \frac{4J^\perp (H_\ell^{\text{eff}})_z^2}{(H_\ell^{\text{eff}})^2} \left[-\frac{\beta S^2}{\sinh^2(\beta S H_\ell^{\text{eff}})} - \frac{S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}})}{H_\ell^{\text{eff}}} + \frac{2}{\beta (H_\ell^{\text{eff}})^2} \right] + \frac{4J^\perp}{H_\ell^{\text{eff}}} \left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right)
\end{aligned} \tag{D.2.54}$$

を得る。以上をまとめると、

$$a_\ell \equiv \frac{1}{(H_\ell^{\text{eff}})^2} \left[-\frac{\beta S^2}{\sinh^2(\beta S H_\ell^{\text{eff}})} - \frac{S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}})}{H_\ell^{\text{eff}}} + \frac{2}{\beta (H_\ell^{\text{eff}})^2} \right] \tag{D.2.55}$$

$$b_\ell \equiv \frac{1}{H_\ell^{\text{eff}}} \left(S \coth(\beta S H_\ell^{\text{eff}}) - \frac{1}{\beta H_\ell^{\text{eff}}} \right) \tag{D.2.56}$$

を用いて

$$\frac{\partial \mathbf{g}_\ell}{\partial \mathbf{M}_\ell} = 4J^\perp \begin{pmatrix} a_\ell (H_\ell^{\text{eff}})_x^2 + b_\ell & a_\ell (H_\ell^{\text{eff}})_x (H_\ell^{\text{eff}})_y & a_\ell (H_\ell^{\text{eff}})_x (H_\ell^{\text{eff}})_z \\ a_\ell (H_\ell^{\text{eff}})_x (H_\ell^{\text{eff}})_y & a_\ell (H_\ell^{\text{eff}})_y^2 + b_\ell & a_\ell (H_\ell^{\text{eff}})_y (H_\ell^{\text{eff}})_z \\ a_\ell (H_\ell^{\text{eff}})_x (H_\ell^{\text{eff}})_z & a_\ell (H_\ell^{\text{eff}})_y (H_\ell^{\text{eff}})_z & a_\ell (H_\ell^{\text{eff}})_z^2 + b_\ell \end{pmatrix} \tag{D.2.57}$$

をえる。

同様に

$$\frac{\partial \mathbf{g}_\ell}{\partial \mathbf{M}_{\ell-1}} = \begin{pmatrix} \frac{\partial g_\ell^x}{\partial M_{\ell-1}^x} & \frac{\partial g_\ell^x}{\partial M_{\ell-1}^y} & \frac{\partial g_\ell^x}{\partial M_{\ell-1}^z} \\ \frac{\partial g_\ell^y}{\partial M_{\ell-1}^x} & \frac{\partial g_\ell^y}{\partial M_{\ell-1}^y} & \frac{\partial g_\ell^y}{\partial M_{\ell-1}^z} \\ \frac{\partial g_\ell^z}{\partial M_{\ell-1}^x} & \frac{\partial g_\ell^z}{\partial M_{\ell-1}^y} & \frac{\partial g_\ell^z}{\partial M_{\ell-1}^z} \end{pmatrix}, \quad \frac{\partial \mathbf{g}_\ell}{\partial \mathbf{M}_{\ell+1}} = \begin{pmatrix} \frac{\partial g_\ell^x}{\partial M_{\ell+1}^x} & \frac{\partial g_\ell^x}{\partial M_{\ell+1}^y} & \frac{\partial g_\ell^x}{\partial M_{\ell+1}^z} \\ \frac{\partial g_\ell^y}{\partial M_{\ell+1}^x} & \frac{\partial g_\ell^y}{\partial M_{\ell+1}^y} & \frac{\partial g_\ell^y}{\partial M_{\ell+1}^z} \\ \frac{\partial g_\ell^z}{\partial M_{\ell+1}^x} & \frac{\partial g_\ell^z}{\partial M_{\ell+1}^y} & \frac{\partial g_\ell^z}{\partial M_{\ell+1}^z} \end{pmatrix} \tag{D.2.58}$$

らも求めると、

$$\frac{\partial g_\ell}{\partial M_{\ell-1}} = \begin{pmatrix} a_\ell \left[J^\parallel (H_\ell^{\text{eff}})_x^2 + D(H_\ell^{\text{eff}})_x (H_\ell^{\text{eff}})_y \right] + b_\ell J^\parallel & a_\ell \left[J^\parallel (H_\ell^{\text{eff}})_x (H_\ell^{\text{eff}})_y - D(H_\ell^{\text{eff}})_x^2 \right] - b_\ell D & a_\ell J^\parallel (H_\ell^{\text{eff}})_x (H_\ell^{\text{eff}})_z \\ a_\ell \left[J^\parallel (H_\ell^{\text{eff}})_x (H_\ell^{\text{eff}})_y + D(H_\ell^{\text{eff}})_y^2 \right] + b_\ell D & a_\ell \left[J^\parallel (H_\ell^{\text{eff}})_y^2 - D(H_\ell^{\text{eff}})_x (H_\ell^{\text{eff}})_y \right] + b_\ell J^\parallel & a_\ell J^\parallel (H_\ell^{\text{eff}})_y (H_\ell^{\text{eff}})_z \\ a_\ell \left[J^\parallel (H_\ell^{\text{eff}})_x (H_\ell^{\text{eff}})_z + D(H_\ell^{\text{eff}})_y (H_\ell^{\text{eff}})_z \right] & a_\ell \left[J^\parallel (H_\ell^{\text{eff}})_y (H_\ell^{\text{eff}})_z - D(H_\ell^{\text{eff}})_x (H_\ell^{\text{eff}})_z \right] & a_\ell J^\parallel (H_\ell^{\text{eff}})_z^2 + b_\ell J^\parallel \end{pmatrix} \quad (\text{D.2.59})$$

および

$$\frac{\partial g_\ell}{\partial M_{\ell+1}} = \begin{pmatrix} a_\ell \left[J^\parallel (H_\ell^{\text{eff}})_x^2 - D(H_\ell^{\text{eff}})_x (H_\ell^{\text{eff}})_y \right] + b_\ell J^\parallel & a_\ell \left[J^\parallel (H_\ell^{\text{eff}})_x (H_\ell^{\text{eff}})_y + D(H_\ell^{\text{eff}})_x^2 \right] + b_\ell D & a_\ell J^\parallel (H_\ell^{\text{eff}})_x (H_\ell^{\text{eff}})_z \\ a_\ell \left[J^\parallel (H_\ell^{\text{eff}})_x (H_\ell^{\text{eff}})_y - D(H_\ell^{\text{eff}})_y^2 \right] - b_\ell D & a_\ell \left[J^\parallel (H_\ell^{\text{eff}})_y^2 + D(H_\ell^{\text{eff}})_x (H_\ell^{\text{eff}})_y \right] + b_\ell J^\parallel & a_\ell J^\parallel (H_\ell^{\text{eff}})_y (H_\ell^{\text{eff}})_z \\ a_\ell \left[J^\parallel (H_\ell^{\text{eff}})_x (H_\ell^{\text{eff}})_z - D(H_\ell^{\text{eff}})_y (H_\ell^{\text{eff}})_z \right] & a_\ell \left[J^\parallel (H_\ell^{\text{eff}})_y (H_\ell^{\text{eff}})_z + D(H_\ell^{\text{eff}})_x (H_\ell^{\text{eff}})_z \right] & a_\ell J^\parallel (H_\ell^{\text{eff}})_z^2 + b_\ell J^\parallel \end{pmatrix} \quad (\text{D.2.60})$$

を得る。

D.2.3 解析的・数値的に求めた比熱の比較

比熱の解析的な表式は不安定型の二次転移のときには良い評価を与える。図 D.1 は、不安定型の二次転移をのときの転移点近傍における比熱の振る舞いを、数値微分によって求めたものと、解析的な表式で求めたものとで比較したものである。両者が良く一致していることが分かる。

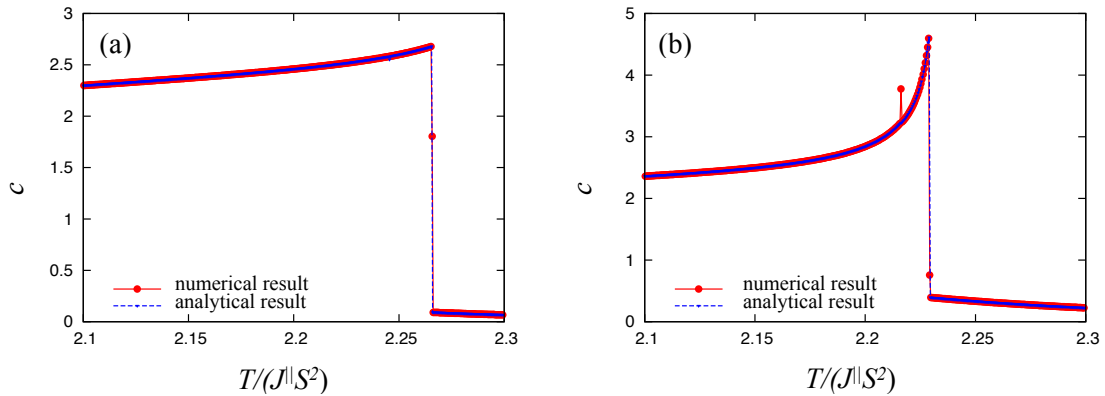


図 D.1: 数値微分で求めた比熱と、解析的な表式から求めた比熱。パラメータは $D/J^\parallel = 1$, $J^\perp/J^\parallel = 1$, (a) $H/(J^\parallel S) = 0.05$, (b) $H/(J^\parallel S) = 0.1$ (どちらも不安定型の二次転移の領域)。システムサイズは $N_z = 400$ 。

一方で、有限系のカイラルらせん磁性体を考える上では、核生成型の二次転移や一次転移における比熱の振る舞いを評価するのは難しい。図 D.2 は、核生成型の二次転移の領域で、数値計算で求めた比熱と、解析的な表式から求めた比熱をプロットしたものである。数値計算で出てくる細かなピークは、ソリトンが出入りする際にエネルギーが不連続に変化する際に起こるものである。このような不連続変化が起こらないときには、数値計算で求めた比熱と解析的に求めた比熱の値はよく一致する。転移点近傍では、数値計算の刻み幅 ΔT の範囲内でソリトンが複数個抜けることによって、結果が一致しなくなるが、刻み幅 ΔT を小さくしていき、必ず ΔT の範囲内ではソリトンが2個以上変化しないように設定すると、ピーク以外の部分で二つの計算結果は一致する。らせん軸方向のシステムサイズ (N_z) を大きくしていくと、数値計算で出てくるデルタピーク

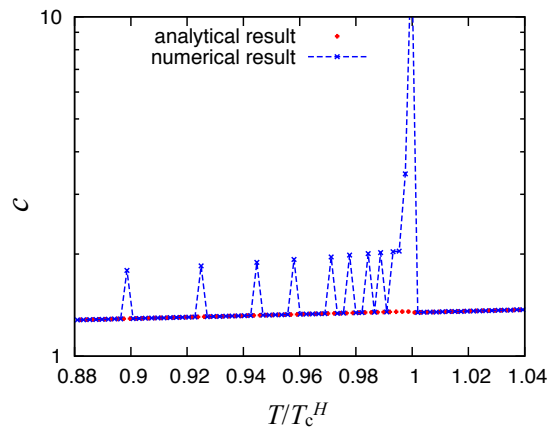


図 D.2: 数値微分で求めた比熱と、解析的な表式から求めた比熱。パラメータは $D/J^{\parallel} = 1$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 1$, $H/(J^{\parallel}S) = 0.4$ を用い (核生成型の二次転移の領域)、システムサイズは $N_z = 400$ とした。

クは、ピークの高さが低くなり、ピークの数が増える。これは、系全体に対してソリトン1個のエネルギー変化が相対的に小さくなり、系内に入るソリトンの個数が増えることに対応するものである。 N_z を無限大にすると、ピークの高さは $1/\infty$ になり、ピークの数は無数になる。このとき、数値計算と解析的に求めた比熱が一致するかというと、そうではない。解析的に求めた比熱は、無限小のピークとピークの間における値をとるだけだからである。ゆえに、無限系における比熱を、

$$c = \lim_{N_z \rightarrow \infty} \frac{1}{N_z} \frac{dE(N_z, T)}{dT} \quad (\text{D.2.61})$$

の様にして求めるのは、非常に困難である。無限系の比熱の振る舞いを知るには、まずエネルギーの $N_z \rightarrow \infty$ の極限を知り、それを微分する方が有効である：

$$c = \frac{d}{dT} \left[\lim_{N_z \rightarrow \infty} \frac{1}{N_z} E(N_z, T) \right]. \quad (\text{D.2.62})$$

エネルギーのプロファイルは、細かく見るとステップ状の振る舞いをしているが、それらは非常に小さいため、400 サイト程度の数値計算の結果でも、Dzyaloshinskii が導出したエネルギーの表式 [38]:

$$E/N = \frac{p}{\log [T_c^H/(J^{\parallel}S^2) - T/(J^{\parallel}S^2)]} + qT/(J^{\parallel}S^2) + r \quad (\text{D.2.63})$$

に良く一致する。 p, q, r をフィッティングパラメータとして、 $0.88 \leq T/T_c \leq 1$ の範囲でフィッティングした結果を図 D.3 (a) に示す。このとき、フィッティングパラメータは $p = 0.155 \pm 0.004$, $q = 3.36 \pm 0.01$, $r = 1.23 \pm 0.01$ となった。比熱はこれの微分で表される：

$$c = \frac{p}{[T_c^H/(J^{\parallel}S^2) - T/(J^{\parallel}S^2)] \log^2 [T_c^H/(J^{\parallel}S^2) - T/(J^{\parallel}S^2)]} + q \quad (\text{D.2.64})$$

これを図 D.3(b) に、青い点線で示す。これを熱力学極限における比熱の振る舞いとして捉えることができる。

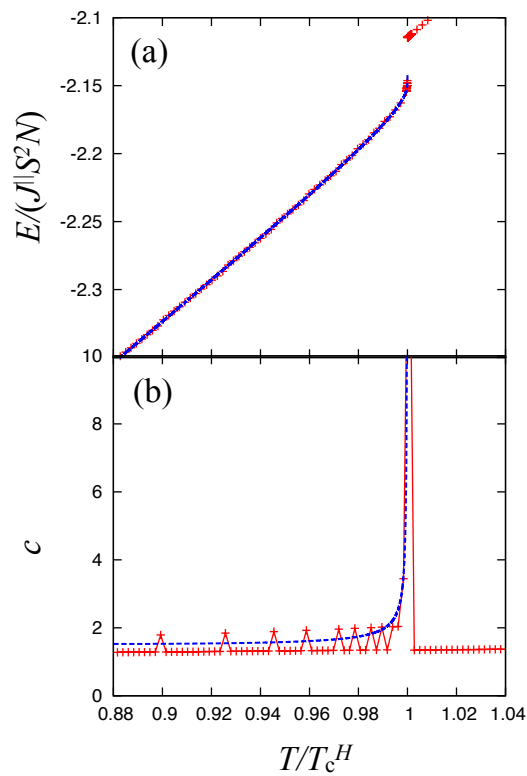


図 D.3: (a) エネルギーの温度依存性。パラメーターは $D/J^{\parallel} = 1$, $J^{\perp}/J^{\parallel} = 1$, $H/(J^{\parallel}S) = 0.4$ を使い、システムサイズは $N_z = 400$ とした。青い点線はフィッティング関数(式 (D.2.63))。 (b) 比熱の温度依存性。青い点線は (a) のフィッティングで求めたフィッティングパラメーターを用いて式 (D.2.64) をプロットしたもの。

補足 E 三重臨界点

(2.2.6) 式で書かれる自由エネルギーを

$$F/N = f_0 + a_2\xi^2 + a_4\xi^4 + \dots \quad (\text{E.0.1})$$

と展開することを考える。まず始めに、磁気モーメントを

$$M_\ell^x = M_0 + \xi\sigma_1 \cos(q\ell) + \xi^2[A + \bar{\sigma}_1 \cos(2q\ell)] + \xi^3\bar{\sigma}_1 \cos(3q\ell) + \xi^4[B + \bar{\bar{\sigma}}_1 \cos(4q\ell)] + \dots \quad (\text{E.0.2})$$

$$M_\ell^y = -\xi\sigma_2 \sin(q\ell) - \xi^2\bar{\sigma}_2 \sin(2q\ell) - \xi^3\bar{\bar{\sigma}}_2 \sin(3q\ell) - \xi^4\bar{\bar{\bar{\sigma}}}_2 \sin(4q\ell) + \dots \quad (\text{E.0.3})$$

と展開し、 $H_\ell^{\text{eff}} \equiv |\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}}|$ を ξ について展開する。ここで、 $q = \bar{q} + \mathcal{O}(\xi^2)$ 、 $\sigma_1^2 + \sigma_2^2 = 1$ とする。まずは成分を計算すると、

$$\begin{aligned} (H_\ell^{\text{eff}})^x &= J^\parallel(M_{\ell+1}^x + M_{\ell-1}^x) + 4J^\perp M_\ell^x + D(M_{\ell+1}^y - M_{\ell-1}^y) + H \\ &= J^\parallel \{ M_0 + \xi\sigma_1 \cos(q(\ell+1)) + \xi^2[A + \bar{\sigma}_1 \cos(2q(\ell+1))] + \xi^3\bar{\sigma}_1 \cos(3q(\ell+1)) + \xi^4[B + \bar{\bar{\sigma}}_1 \cos(4q(\ell+1))] + \dots \\ &\quad + M_0 + \xi\sigma_1 \cos(q(\ell-1)) + \xi^2[A + \bar{\sigma}_1 \cos(2q(\ell-1))] + \xi^3\bar{\sigma}_1 \cos(3q(\ell-1)) + \xi^4[B + \bar{\bar{\sigma}}_1 \cos(4q(\ell-1))] + \dots \} \\ &\quad + 4J^\perp \{ M_0 + \xi\sigma_1 \cos(q\ell) + \xi^2[A + \bar{\sigma}_1 \cos(2q\ell)] + \xi^3\bar{\sigma}_1 \cos(3q\ell) + \xi^4[B + \bar{\bar{\sigma}}_1 \cos(4q\ell)] + \dots \} \\ &\quad + D \{ -\xi\sigma_2 \sin(q(\ell+1)) - \xi^2\bar{\sigma}_2 \sin(2q(\ell+1)) - \xi^3\bar{\bar{\sigma}}_2 \sin(3q(\ell+1)) - \xi^4\bar{\bar{\bar{\sigma}}}_2 \sin(4q(\ell+1)) + \dots \\ &\quad + \xi\sigma_2 \sin(q(\ell-1)) + \xi^2\bar{\sigma}_2 \sin(2q(\ell-1)) - \xi^3\bar{\bar{\sigma}}_2 \sin(3q(\ell-1)) - \xi^4\bar{\bar{\bar{\sigma}}}_2 \sin(4q(\ell-1)) + \dots \} + H \\ &= J^\parallel [2M_0 + 2\xi\sigma_1 \cos(q\ell) \cos q + 2\xi^2 A + 2\xi^2 \bar{\sigma}_1 \cos(2q\ell) \cos(2q) + 2\xi^3 \bar{\sigma}_1 \cos(3q\ell) \cos(3q) \\ &\quad + 2\xi^4 B + 2\xi^4 \bar{\bar{\sigma}}_1 \cos(4q\ell) \cos(4q)] \\ &\quad + 4J^\perp [M_0 + \xi\sigma_1 \cos(q\ell) + \xi^2 A + \xi^2 \bar{\sigma}_1 \cos(2q\ell) + \xi^3 \bar{\sigma}_1 \cos(3q\ell) + \xi^4 B + \xi^4 \bar{\bar{\sigma}}_1 \cos(4q\ell)] \\ &\quad + D [-2\xi\sigma_2 \cos(q\ell) \sin q - 2\xi^2 \bar{\sigma}_2 \cos(2q\ell) \sin(2q) - 2\xi^3 \bar{\bar{\sigma}}_2 \cos(3q\ell) \sin(3q) - 2\xi^4 \bar{\bar{\bar{\sigma}}}_2 \cos(4q\ell) \sin(4q)] + H \\ &= 2J^\parallel M_0 + 4J^\perp M_0 + H + [2J^\parallel \sigma_1 \cos(q\ell) \cos q + 4J^\perp \sigma_1 \cos(q\ell) - 2D\sigma_2 \cos(q\ell) \sin q] \xi \\ &\quad + [2J^\parallel A + 2J^\parallel \bar{\sigma}_1 \cos(2q\ell) \cos(2q) + 4J^\perp A + 4J^\perp \bar{\sigma}_1 \cos(2q\ell) - 2D\bar{\sigma}_2 \cos(2q\ell) \sin(2q)] \xi^2 \\ &\quad + [2J^\parallel \bar{\sigma}_1 \cos(3q\ell) \cos(3q) + 4J^\perp \bar{\sigma}_1 \cos(3q\ell) - 2D\bar{\bar{\sigma}}_2 \cos(3q\ell) \sin(3q)] \xi^3 \\ &\quad + [2J^\parallel B + 2J^\parallel \bar{\bar{\sigma}}_1 \cos(4q\ell) \cos(4q) + 4J^\perp B + 4J^\perp \bar{\bar{\sigma}}_1 \cos(4q\ell) - 2D\bar{\bar{\bar{\sigma}}}_2 \cos(4q\ell) \sin(4q)] \xi^4 + \mathcal{O}(\xi^5) \\ &= 2J^\parallel M_0 + 4J^\perp M_0 + H + [2J^\parallel \sigma_1 \cos q + 4J^\perp \sigma_1 - 2D\sigma_2 \sin q] \cos(q\ell) \xi \\ &\quad + (2J^\parallel A + 4J^\perp A) \xi^2 + [2J^\parallel \bar{\sigma}_1 \cos(2q) + 4J^\perp \bar{\sigma}_1 - 2D\bar{\sigma}_2 \sin(2q)] \cos(2q\ell) \xi^2 \\ &\quad + [2J^\parallel \bar{\sigma}_1 \cos(3q) + 4J^\perp \bar{\sigma}_1 - 2D\bar{\bar{\sigma}}_2 \sin(3q)] \cos(3q\ell) \xi^3 \\ &\quad + (2J^\parallel B + 4J^\perp B) \xi^4 + [2J^\parallel \bar{\bar{\sigma}}_1 \cos(4q) + 4J^\perp \bar{\bar{\sigma}}_1 - 2D\bar{\bar{\bar{\sigma}}}_2 \sin(4q)] \cos(4q\ell) \xi^4 + \mathcal{O}(\xi^5) \end{aligned} \quad (\text{E.0.4})$$

同様に

$$\begin{aligned}
(H_\ell^{\text{eff}})^y &= J^\parallel (M_{\ell+1}^y + M_{\ell-1}^y) + 4J^\perp M_\ell^y - D(M_{\ell+1}^x - M_{\ell-1}^x) \\
&= [-2J^\parallel \sigma_2 \cos q - 4J^\perp \sigma_2 + 2D\sigma_1 \sin q] \sin(q\ell)\xi \\
&\quad + [-2J^\parallel \bar{\sigma}_2 \cos(2q) - 4J^\perp \bar{\sigma}_2 + 2D\bar{\sigma}_1 \sin(2q)] \sin(2q\ell)\xi^2 \\
&\quad + [-2J^\parallel \bar{\bar{\sigma}}_2 \cos(3q) - 4J^\perp \bar{\bar{\sigma}}_2 + 2D\bar{\bar{\sigma}}_1 \sin(3q)] \sin(3q\ell)\xi^3 \\
&\quad + [-2J^\parallel \bar{\bar{\bar{\sigma}}}_2 \cos(4q) - 4J^\perp \bar{\bar{\bar{\sigma}}}_2 + 2D\bar{\bar{\bar{\sigma}}}_1 \sin(4q)] \sin(4q\ell)\xi^4 + \mathcal{O}(\xi^5)
\end{aligned} \tag{E.0.5}$$

である。ここで、後の計算を見やすくするために、

$$H_0 = 2J^\parallel M_0 + 4J^\perp M_0 + H \tag{E.0.6}$$

$$h_1 \equiv [J^\parallel \sigma_1 \cos q + 2J^\perp \sigma_1 - D\sigma_2 \sin q] \tag{E.0.7}$$

$$\bar{h}_1 \equiv [J^\parallel \bar{\sigma}_1 \cos(2q) + 2J^\perp \bar{\sigma}_1 - D\bar{\sigma}_2 \sin(2q)] \tag{E.0.8}$$

$$\bar{\bar{h}}_1 \equiv [J^\parallel \bar{\bar{\sigma}}_1 \cos(3q) + 2J^\perp \bar{\bar{\sigma}}_1 - D\bar{\bar{\sigma}}_2 \sin(3q)] \tag{E.0.9}$$

$$\bar{\bar{\bar{h}}}_1 \equiv [J^\parallel \bar{\bar{\bar{\sigma}}}_1 \cos(4q) + 2J^\perp \bar{\bar{\bar{\sigma}}}_1 - D\bar{\bar{\bar{\sigma}}}_2 \sin(4q)] \tag{E.0.10}$$

および

$$h_2 \equiv [J^\parallel \sigma_2 \cos q + 2J^\perp \sigma_2 - D\sigma_1 \sin q] \tag{E.0.11}$$

$$\bar{h}_2 \equiv [J^\parallel \bar{\sigma}_2 \cos(2q) + 2J^\perp \bar{\sigma}_2 - D\bar{\sigma}_1 \sin(2q)] \tag{E.0.12}$$

$$\bar{\bar{h}}_2 \equiv [J^\parallel \bar{\bar{\sigma}}_2 \cos(3q) + 2J^\perp \bar{\bar{\sigma}}_2 - D\bar{\bar{\sigma}}_1 \sin(3q)] \tag{E.0.13}$$

$$\bar{\bar{\bar{h}}}_2 \equiv [J^\parallel \bar{\bar{\bar{\sigma}}}_2 \cos(4q) + 2J^\perp \bar{\bar{\bar{\sigma}}}_2 - D\bar{\bar{\bar{\sigma}}}_1 \sin(4q)] \tag{E.0.14}$$

とおく。すると、

$$\begin{aligned}
(H_\ell^{\text{eff}})^x &= H_0 + 2h_1 \cos(q\ell)\xi + 2A(J^\parallel + 2J^\perp)\xi^2 + 2\bar{h}_1 \cos(2q\ell)\xi^2 + 2\bar{\bar{h}}_1 \cos(3q\ell)\xi^3 \\
&\quad + 2B(J^\parallel + 2J^\perp)\xi^4 + 2\bar{\bar{\bar{h}}}_1 \cos(4q\ell)\xi^4 + \mathcal{O}(\xi^5)
\end{aligned} \tag{E.0.15}$$

$$(H_\ell^{\text{eff}})^y = -2h_2 \sin(q\ell)\xi - 2\bar{h}_2 \sin(2q\ell)\xi^2 - 2\bar{\bar{h}}_2 \sin(3q\ell)\xi^3 - 2\bar{\bar{\bar{h}}}_2 \sin(4q\ell)\xi^4 + \mathcal{O}(\xi^5) \tag{E.0.16}$$

となる。ここから、

$$\begin{aligned}
(H_\ell^{\text{eff}})^2 &= [(H_\ell^{\text{eff}})^x]^2 + [(H_\ell^{\text{eff}})^y]^2 \\
&= H_0^2 + 4H_0 h_1 \cos(q\ell)\xi \\
&\quad + 4H_0 A (J^\parallel + 2J^\perp)\xi^2 + 4H_0 \bar{h}_1 \cos(2q\ell)\xi^2 + 4h_1^2 \cos^2(q\ell)\xi^2 + 4h_2^2 \sin^2(q\ell)\xi^2 \\
&\quad + 8A h_1 (J^\parallel + 2J^\perp) \cos(q\ell)\xi^3 + 4H_0 \bar{\bar{h}}_1 \cos(3q\ell)\xi^3 \\
&\quad + 8h_1 \bar{h}_1 \cos(q\ell) \cos(2q\ell)\xi^3 + 8h_2 \bar{h}_2 \sin(q\ell) \sin(2q\ell)\xi^3 \\
&\quad + 4A^2 (J^\parallel + 2J^\perp)^2 \xi^4 + 4H_0 B (J^\parallel + 2J^\perp)\xi^4 + 8A \bar{h}_1 (J^\parallel + 2J^\perp) \cos(2q\ell)\xi^4 \\
&\quad + 4H_0 \bar{\bar{\bar{h}}}_1 \cos(4q\ell)\xi^4 + 4\bar{h}_1^2 \cos^2(2q\ell)\xi^4 + 4\bar{h}_2^2 \sin^2(2q\ell)\xi^4 \\
&\quad + 8h_1 \bar{\bar{\bar{h}}}_1 \cos(q\ell) \cos(3q\ell)\xi^4 + 8h_2 \bar{\bar{\bar{h}}}_2 \sin(q\ell) \sin(3q\ell)\xi^4
\end{aligned} \tag{E.0.17}$$

となる。ここで、これを $H_0^2 + s_\ell \xi + t_\ell \xi^2 + u_\ell \xi^3 + v_\ell \xi^4 + \dots$ とおくとすると、

$$\begin{aligned}
H_\ell^{\text{eff}} &= \sqrt{[(H_\ell^{\text{eff}})^x]^2 + [(H_\ell^{\text{eff}})^y]^2} = H_0 \sqrt{1 + \frac{s_\ell}{H_0^2} \xi + \frac{t_\ell}{H_0^2} \xi^2 + \frac{u_\ell}{H_0^2} \xi^3 + \frac{v_\ell}{H_0^2} \xi^4 + \dots} \\
&= H_0 + \frac{1}{2} \left(\frac{s_\ell}{H_0} \xi + \frac{t_\ell}{H_0} \xi^2 + \frac{u_\ell}{H_0} \xi^3 + \frac{v_\ell}{H_0} \xi^4 + \dots \right) - \frac{H_0}{8} \left(\frac{s_\ell}{H_0^2} \xi + \frac{t_\ell}{H_0^2} \xi^2 + \frac{u_\ell}{H_0^2} \xi^3 + \frac{v_\ell}{H_0^2} \xi^4 + \dots \right)^2 \\
&\quad + \frac{H_0}{16} \left(\frac{s_\ell}{H_0^2} \xi + \frac{t_\ell}{H_0^2} \xi^2 + \frac{u_\ell}{H_0^2} \xi^3 + \frac{v_\ell}{H_0^2} \xi^4 + \dots \right)^3 - \frac{5H_0}{128} \left(\frac{s_\ell}{H_0^2} \xi + \frac{t_\ell}{H_0^2} \xi^2 + \frac{u_\ell}{H_0^2} \xi^3 + \frac{v_\ell}{H_0^2} \xi^4 + \dots \right)^4 \dots \\
&= H_0 + \frac{s_\ell}{2H_0} \xi + \left(\frac{t_\ell}{2H_0} - \frac{s_\ell^2}{8H_0^3} \right) \xi^2 + \left(\frac{u_\ell}{2H_0} - \frac{s_\ell t_\ell}{4H_0^3} + \frac{s_\ell^3}{16H_0^5} \right) \xi^3 \\
&\quad + \left(\frac{v_\ell}{2H_0} - \frac{t_\ell^2}{8H_0^3} - \frac{s_\ell u_\ell}{4H_0^3} + \frac{3s_\ell^2 t_\ell}{16H_0^5} - \frac{5s_\ell^4}{128H_0^7} \right) \xi^4 + \mathcal{O}(\xi^5) \tag{E.0.18}
\end{aligned}$$

となる。これを改めて

$$H_\ell^{\text{eff}} = H_0 + S_\ell \xi + T_\ell \xi^2 + U_\ell \xi^3 + V_\ell \xi^4 + \dots \tag{E.0.19}$$

とおく。すると、これらの係数は

$$S_\ell = \frac{s_\ell}{2H_0} \equiv 2h_1 \cos(q\ell) \tag{E.0.20}$$

$$\begin{aligned}
T_\ell &= \frac{t_\ell}{2H_0} - \frac{s_\ell^2}{8H_0^3} \\
&\equiv 2A(J^\parallel + 2J^\perp) + 2\bar{h}_1 \cos(2q\ell) + \frac{2}{H_0} h_1^2 \cos^2(q\ell) + \frac{2}{H_0} h_2^2 \sin^2(q\ell) - \frac{2}{H_0} h_1^2 \cos^2(q\ell) \\
&= 2A(J^\parallel + 2J^\perp) + 2\bar{h}_1 \cos(2q\ell) + \frac{2}{H_0} h_2^2 \sin^2(q\ell) \tag{E.0.21}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
U_\ell &= \frac{u_\ell}{2H_0} - \frac{s_\ell t_\ell}{4H_0^3} + \frac{s_\ell^3}{16H_0^5} \\
&\equiv 2\bar{h}_1 \cos(3q\ell) + \frac{4A}{H_0} (J^\parallel + 2J^\perp) h_1 \cos(q\ell) + \frac{4}{H_0} h_1 \bar{h}_1 \cos(q\ell) \cos(2q\ell) + \frac{4}{H_0} h_2 \bar{h}_2 \sin(q\ell) \sin(2q\ell) \\
&\quad - \frac{1}{4H_0^3} 4H_0 h_1 \cos(q\ell) \left[4H_0 A (J^\parallel + 2J^\perp) + 4H_0 \bar{h}_1 \cos(2q\ell) + 4h_1^2 \cos^2(q\ell) + 4h_2^2 \sin^2(q\ell) \right] \\
&\quad + \frac{1}{16H_0^5} [4H_0 h_1 \cos(q\ell)]^3 \\
&= 2\bar{h}_1 \cos(3q\ell) + \frac{4}{H_0} h_2 \bar{h}_2 \sin(q\ell) \sin(2q\ell) - \frac{4}{H_0^2} h_1 \cos(q\ell) [h_1^2 \cos^2(q\ell) + h_2^2 \sin^2(q\ell)] \\
&\quad + \frac{4}{H_0^2} h_1^3 \cos^3(q\ell) \tag{E.0.22}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
V_\ell &= \frac{v_\ell}{2H_0} - \frac{t_\ell^2}{8H_0^3} - \frac{s_\ell u_\ell}{4H_0^3} + \frac{3s_\ell^2 t_\ell}{16H_0^5} - \frac{5s_\ell^4}{128H_0^7} \\
&\equiv \frac{2A^2}{H_0} (J^\parallel + 2J^\perp)^2 + 2B(J^\parallel + 2J^\perp) + \frac{4A}{H_0} (J^\parallel + 2J^\perp) \bar{h}_1 \cos(2q\ell) + 2\bar{\bar{h}}_1 \cos(4q\ell) \\
&\quad + \frac{2}{H_0} \bar{h}_1^2 \cos^2(2q\ell) + \frac{2}{H_0} \bar{h}_2^2 \sin^2(2q\ell) + \frac{4}{H_0} h_1 \bar{h}_1 \cos(q\ell) \cos(3q\ell) + \frac{4}{H_0} h_2 \bar{h}_2 \sin(q\ell) \sin(3q\ell) \\
&\quad - \frac{1}{8H_0^3} \left[4H_0 A (J^\parallel + 2J^\perp) + 4H_0 \bar{h}_1 \cos(2q\ell) + 4h_1^2 \cos^2(q\ell) + 4h_2^2 \sin^2(q\ell) \right]^2 \\
&\quad - \frac{1}{4H_0^3} \times 4H_0 h_1 \cos(q\ell) \\
&\quad \quad \times \left[8A (J^\parallel + 2J^\perp) h_1 \cos(q\ell) + 4H_0 \bar{\bar{h}}_1 \cos(3q\ell) \right. \\
&\quad \quad \quad \left. + 8h_1 \bar{h}_1 \cos(q\ell) \cos(2q\ell) + 8h_2 \bar{h}_2 \sin(q\ell) \sin(2q\ell) \right] \\
&\quad + \frac{3}{16H_0^3} \times [4H_0 h_1 \cos(q\ell)]^2 \\
&\quad \quad \times \left[4H_0 A (J^\parallel + 2J^\perp) + 4H_0 \bar{h}_1 \cos(2q\ell) + 4h_1^2 \cos^2(q\ell) + 4h_2^2 \sin^2(q\ell) \right] \\
&\quad - \frac{5}{128H_0^7} \times [4H_0 h_1 \cos(q\ell)]^4 \\
&= \frac{2A^2}{H_0} (J^\parallel + 2J^\perp)^2 + 2B(J^\parallel + 2J^\perp) + \frac{4A}{H_0} (J^\parallel + 2J^\perp) \bar{h}_1 \cos(2q\ell) + 2\bar{\bar{h}}_1 \cos(4q\ell) \\
&\quad + \frac{2}{H_0} \bar{h}_1^2 \cos^2(2q\ell) + \frac{2}{H_0} \bar{h}_2^2 \sin^2(2q\ell) + \frac{4}{H_0} h_1 \bar{h}_1 \cos(q\ell) \cos(3q\ell) + \frac{4}{H_0} h_2 \bar{h}_2 \sin(q\ell) \sin(3q\ell) \\
&\quad - \frac{2}{H_0^3} \left[H_0^2 A^2 (J^\parallel + 2J^\perp)^2 + H_0^2 \bar{h}_1^2 \cos^2(2q\ell) + h_1^4 \cos^4(q\ell) + h_2^4 \sin^4(q\ell) \right. \\
&\quad \quad + 2H_0^2 A (J^\parallel + 2J^\perp) \bar{h}_1 \cos(2q\ell) + 2H_0 A (J^\parallel + 2J^\perp) h_1^2 \cos^2(q\ell) + 2H_0 A (J^\parallel + 2J^\perp) h_2^2 \sin^2(q\ell) \\
&\quad \quad \left. + 2H_0 h_1^2 \bar{h}_1 \cos^2(q\ell) \cos(2q\ell) + 2H_0 h_2^2 \bar{h}_1 \sin^2(q\ell) \cos(2q\ell) + 2h_1^2 h_2^2 \cos^2(q\ell) \sin^2(q\ell) \right] \\
&\quad - \frac{4}{H_0^2} h_1 \cos(q\ell) \left[2A (J^\parallel + 2J^\perp) h_1 \cos(q\ell) + H_0 \bar{\bar{h}}_1 \cos(3q\ell) \right. \\
&\quad \quad \quad \left. + 2h_1 \bar{h}_1 \cos(q\ell) \cos(2q\ell) + 2h_2 \bar{h}_2 \sin(q\ell) \sin(2q\ell) \right] \\
&\quad + \frac{12}{H_0^3} [h_1 \cos(q\ell)]^2 \left[H_0 A (J^\parallel + 2J^\perp) + H_0 \bar{h}_1 \cos(2q\ell) + h_1^2 \cos^2(q\ell) + h_2^2 \sin^2(q\ell) \right] \\
&\quad - \frac{10}{H_0^3} [h_1 \cos(q\ell)]^4 \\
&= \frac{2A^2}{H_0} (J^\parallel + 2J^\perp)^2 + 2B(J^\parallel + 2J^\perp) + \frac{4A}{H_0} (J^\parallel + 2J^\perp) \bar{h}_1 \cos(2q\ell) + 2\bar{\bar{h}}_1 \cos(4q\ell) \\
&\quad + \frac{2}{H_0} \bar{h}_1^2 \cos^2(2q\ell) + \frac{2}{H_0} \bar{h}_2^2 \sin^2(2q\ell) + \frac{4}{H_0} h_1 \bar{h}_1 \cos(q\ell) \cos(3q\ell) + \frac{4}{H_0} h_2 \bar{h}_2 \sin(q\ell) \sin(3q\ell) \\
&\quad - \frac{2}{H_0} A^2 (J^\parallel + 2J^\perp)^2 - \frac{2}{H_0} \bar{h}_1^2 \cos^2(2q\ell) - \frac{2}{H_0^3} h_1^4 \cos^4(q\ell) - \frac{2}{H_0^3} h_2^4 \sin^4(q\ell) \\
&\quad - \frac{4}{H_0} A (J^\parallel + 2J^\perp) \bar{h}_1 \cos(2q\ell) - \frac{4}{H_0^2} A (J^\parallel + 2J^\perp) h_1^2 \cos^2(q\ell) - \frac{4}{H_0^2} A (J^\parallel + 2J^\perp) h_2^2 \sin^2(q\ell) \\
&\quad - \frac{4}{H_0^2} h_1^2 \bar{h}_1 \cos^2(q\ell) \cos(2q\ell) - \frac{4}{H_0^2} h_2^2 \bar{h}_1 \sin^2(q\ell) \cos(2q\ell) - \frac{4}{H_0^3} h_1^2 h_2^2 \cos^2(q\ell) \sin^2(q\ell) \\
&\quad - \frac{8A}{H_0^2} h_1^2 (J^\parallel + 2J^\perp) \cos^2(q\ell) - \frac{4}{H_0} h_1 \bar{h}_1 \cos(q\ell) \cos(3q\ell) \\
&\quad - \frac{8}{H_0^2} h_1^2 \bar{h}_1 \cos^2(q\ell) \cos(2q\ell) - \frac{8}{H_0^2} h_1 h_2 \bar{h}_2 \cos(q\ell) \sin(q\ell) \sin(2q\ell) \\
&\quad + \frac{12}{H_0^2} h_1^2 A (J^\parallel + 2J^\perp) \cos^2(q\ell) + \frac{12}{H_0^2} h_1^2 \bar{h}_1 \cos^2(q\ell) \cos(2q\ell) + \frac{12}{H_0^3} h_1^4 \cos^4(q\ell) + \frac{12}{H_0^3} h_1^2 h_2^2 \cos^2(q\ell) \sin^2(q\ell) \\
&\quad - \frac{10}{H_0^3} h_1^4 \cos^4(q\ell) \tag{E.0.23}
\end{aligned}$$

もう少し整理して、

$$\begin{aligned}
V_\ell = & 2B(J^\parallel + 2J^\perp) + 2\bar{h}_1 \cos(4q\ell) - \frac{4A}{H_0^2}(J^\parallel + 2J^\perp)h_2^2 \sin^2(q\ell) - \frac{2}{H_0^3}h_2^4 \sin^4(q\ell) \\
& + \frac{8}{H_0^3}h_1^2 h_2^2 \cos^2(q\ell) \sin^2(q\ell) - \frac{8}{H_0^2}h_1 h_2 \bar{h}_2 \cos(q\ell) \sin(q\ell) \sin(2q\ell) - \frac{4}{H_0^2}h_2^2 \bar{h}_1 \sin^2(q\ell) \cos(2q\ell) \\
& + \frac{2}{H_0} \bar{h}_2^2 \sin^2(2q\ell) + \frac{4}{H_0} h_2 \bar{h}_2 \sin(q\ell) \sin(3q\ell)
\end{aligned} \tag{E.0.24}$$

である。自由エネルギーの一項目は

$$\begin{aligned}
& -\frac{1}{\beta N_z} \sum_\ell \log \left(\frac{\sinh(\beta S |\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}}|)}{\beta S |\mathbf{H}_\ell^{\text{eff}}|} \right) \\
= & -\frac{1}{\beta N_z} \sum_\ell \log \left(\frac{\sinh(\beta S (H_0 + S_\ell \xi + T_\ell \xi^2 + U_\ell \xi^3 + V_\ell \xi^4 + \dots))}{\beta S (H_0 + S_\ell \xi + T_\ell \xi^2 + U_\ell \xi^3 + V_\ell \xi^4 + \dots)} \right) \\
= & -\frac{1}{\beta N_z} \sum_\ell \log \left(\frac{\sinh(\beta S H_0)}{\beta S H_0} \right) \\
& -\frac{1}{\beta N_z} \sum_\ell \beta S \left(\coth(\beta S H_0) - \frac{1}{\beta S H_0} \right) (S_\ell \xi + T_\ell \xi^2 + U_\ell \xi^3 + V_\ell \xi^4 + \dots) \\
& -\frac{1}{\beta N_z} \sum_\ell \frac{1}{2!} \beta S \frac{\partial}{\partial H_0} \left(\coth(\beta S H_0) - \frac{1}{\beta S H_0} \right) (S_\ell \xi + T_\ell \xi^2 + U_\ell \xi^3 + V_\ell \xi^4 + \dots)^2 \\
& -\frac{1}{\beta N_z} \sum_\ell \frac{1}{3!} \beta S \frac{\partial^2}{\partial H_0^2} \left(\coth(\beta S H_0) - \frac{1}{\beta S H_0} \right) (S_\ell \xi + T_\ell \xi^2 + U_\ell \xi^3 + V_\ell \xi^4 + \dots)^3 \\
& -\frac{1}{\beta N_z} \sum_\ell \frac{1}{4!} \beta S \frac{\partial^3}{\partial H_0^3} \left(\coth(\beta S H_0) - \frac{1}{\beta S H_0} \right) (S_\ell \xi + T_\ell \xi^2 + U_\ell \xi^3 + V_\ell \xi^4 + \dots)^3 - \dots
\end{aligned} \tag{E.0.25}$$

と展開できる。ここで、 $M_\ell^x = M_0$, $M_\ell^y = 0$ のとき

$$M_0 = S \left(\coth(\beta S H_0) - \frac{1}{\beta S H_0} \right), \quad (F/N)^{-\text{項目}} \equiv f_0^{(1)} = -\frac{1}{\beta N_z} \sum_\ell \log \left(\frac{\sinh(\beta S H_0)}{\beta S H_0} \right) \tag{E.0.26}$$

より、 F の一項目を展開したものは

$$\begin{aligned}
& f_0^{(1)} - \frac{1}{N_z} \sum_{\ell} M_0 (S_{\ell} \xi + T_{\ell} \xi^2 + U_{\ell} \xi^3 + V_{\ell} \xi^4 + \dots) \\
& - \frac{1}{2N_z} \sum_{\ell} \frac{\partial M_0}{\partial H_0} (S_{\ell} \xi + T_{\ell} \xi^2 + U_{\ell} \xi^3 + V_{\ell} \xi^4 + \dots)^2 \\
& - \frac{1}{6N_z} \sum_{\ell} \frac{\partial^2 M_0}{\partial H_0^2} (S_{\ell} \xi + T_{\ell} \xi^2 + U_{\ell} \xi^3 + V_{\ell} \xi^4 + \dots)^3 \\
& - \frac{1}{24N_z} \sum_{\ell} \frac{\partial^3 M_0}{\partial H_0^3} (S_{\ell} \xi + T_{\ell} \xi^2 + U_{\ell} \xi^3 + V_{\ell} \xi^4 + \dots)^4 - \dots \\
& = f_0^{(1)} - \frac{M_0}{N_z} \sum_{\ell} S_{\ell} \xi - \frac{M_0}{N_z} \sum_{\ell} T_{\ell} \xi^2 - \frac{1}{2N_z} \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \sum_{\ell} (S_{\ell})^2 \xi^2 \\
& - \frac{M_0}{N_z} \sum_{\ell} U_{\ell} \xi^3 - \frac{1}{N_z} \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \sum_{\ell} S_{\ell} T_{\ell} \xi^3 - \frac{1}{6N_z} \frac{\partial^2 M_0}{\partial H_0^2} \sum_{\ell} (S_{\ell})^3 \xi^3 \\
& - \frac{M_0}{N_z} \sum_{\ell} V_{\ell} \xi^4 - \frac{1}{2N_z} \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \sum_{\ell} (T_{\ell})^2 \xi^4 - \frac{1}{N_z} \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \sum_{\ell} S_{\ell} U_{\ell} \xi^4 \\
& - \frac{1}{2N_z} \frac{\partial^2 M_0}{\partial H_0^2} \sum_{\ell} (S_{\ell})^2 T_{\ell} \xi^4 - \frac{1}{24N_z} \frac{\partial^3 M_0}{\partial H_0^3} \sum_{\ell} (S_{\ell})^4 \xi^4 \\
& + \mathcal{O}(\xi^5) \\
& \equiv f_0^{(1)} + a_1^{(1)} \xi + a_2^{(1)} \xi^2 + a_3^{(1)} \xi^3 + a_4^{(1)} \xi^4 + \mathcal{O}(\xi^5) \tag{E.0.27}
\end{aligned}$$

とかける。ここで、

$$\frac{1}{N_z} \sum_{\ell} S_{\ell} = \frac{1}{N_z} \sum_{\ell} 2h_1 \cos(q\ell) = 0 \tag{E.0.28}$$

より、

$$a_1^{(1)} = 0 \tag{E.0.29}$$

である。また、

$$\frac{1}{N_z} \sum_{\ell} T_{\ell} = \frac{1}{N_z} \sum_{\ell} \left[2A(J^{\parallel} + 2J^{\perp}) + 2\bar{h}_1 \cos(2q\ell) + \frac{2}{H_0} h_2^2 \sin^2(q\ell) \right] = 2A(J^{\parallel} + 2J^{\perp}) + \frac{h_2^2}{H_0} \tag{E.0.30}$$

$$\frac{1}{N_z} \sum_{\ell} (S_{\ell})^2 = \frac{1}{N_z} \sum_{\ell} 4h_1^4 \cos^4(q\ell) = 2h_1^2 \tag{E.0.31}$$

より

$$\begin{aligned}
a_2^{(1)} &= -\frac{M_0}{N_z} \sum_{\ell} T_{\ell} - \frac{1}{2N_z} \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \sum_{\ell} (S_{\ell})^2 \\
&= -M_0 \left\{ 2A(J^{\parallel} + 2J^{\perp}) + \frac{h_2^2}{H_0} \right\} - \frac{\partial M_0}{\partial H_0} h_1^2 \\
&= -2AM_0(J^{\parallel} + 2J^{\perp}) + \frac{M_0}{H_0} h_2^2 - \frac{\partial M_0}{\partial H_0} h_1^2
\end{aligned} \tag{E.0.32}$$

を得る。さらに、

$$\begin{aligned}
\frac{1}{N_z} \sum_{\ell} U_{\ell} &= \frac{1}{N_z} \sum_{\ell} \left\{ 2\bar{h}_1 \cos(3q\ell) + \frac{4}{H_0} h_2 \bar{h}_2 \sin(q\ell) \sin(2q\ell) \right. \\
&\quad \left. - \frac{4}{H_0^2} h_1 \cos(q\ell) [h_1^2 \cos^2(q\ell) + h_2^2 \sin^2(q\ell)] + \frac{4}{H_0^2} h_1^3 \cos^3(q\ell) \right\} \\
&= 0
\end{aligned} \tag{E.0.33}$$

$$\begin{aligned}
\frac{1}{N_z} \sum_{\ell} S_{\ell} T_{\ell} &= \frac{1}{N_z} \sum_{\ell} [2h_1 \cos(q\ell)] \times \left[2A(J^{\parallel} + 2J^{\perp}) + 2h_1 \cos(2q\ell) + \frac{2}{H_0} h_2^2 \sin^2(q\ell) \right] \\
&= 0
\end{aligned} \tag{E.0.34}$$

$$\frac{1}{N_z} \sum_{\ell} (S_{\ell})^3 = \frac{1}{N_z} \sum_{\ell} [2h_1 \cos(q\ell)]^3 = 0 \tag{E.0.35}$$

より、

$$a_3^{(1)} = 0 \tag{E.0.36}$$

である。最後に、 $a_4^{(1)}$ を求める。

$$\begin{aligned}
\frac{1}{N_z} \sum_{\ell} V_{\ell} &= \frac{1}{N_z} \sum_{\ell} \left\{ 2B(J^{\parallel} + 2J^{\perp}) + 2\bar{h}_1 \cos(4q\ell) - \frac{4A}{H_0^2} (J^{\parallel} + 2J^{\perp}) h_2^2 \sin^2(q\ell) - \frac{2}{H_0^3} h_2^4 \sin^4(q\ell) \right. \\
&\quad + \frac{8}{H_0^3} h_1^2 h_2^2 \cos^2(q\ell) \sin^2(q\ell) - \frac{8}{H_0^2} h_1 h_2 \bar{h}_2 \cos(q\ell) \sin(q\ell) \sin(2q\ell) \\
&\quad \left. - \frac{4}{H_0^2} h_2^2 \bar{h}_1 \sin^2(q\ell) \cos(2q\ell) + \frac{2}{H_0} \bar{h}_2^2 \sin^2(2q\ell) + \frac{4}{H_0} h_2 \bar{h}_2 \sin(q\ell) \sin(3q\ell) \right\} \\
&= 2B(J^{\parallel} + 2J^{\perp}) - \frac{2A}{H_0^2} (J^{\parallel} + 2J^{\perp}) h_2^2 - \frac{3}{4H_0^3} h_2^4 + \frac{1}{H_0^3} h_1^2 h_2^2 - \frac{2}{H_0^2} h_1 h_2 \bar{h}_2 \\
&\quad + \frac{1}{H_0^2} h_2^2 \bar{h}_1 + \frac{1}{H_0} \bar{h}_2^2
\end{aligned} \tag{E.0.37}$$

$$\begin{aligned}
\frac{1}{N_z} \sum_{\ell} (T_{\ell})^2 &= \frac{1}{N_z} \sum_{\ell} \left\{ 2A(J^{\parallel} + 2J^{\perp}) + 2\bar{h}_1 \cos(2q\ell) + \frac{2}{H_0} h_2^2 \sin^2(q\ell) \right\}^2 \\
&= \frac{1}{N_z} \sum_{\ell} \left\{ 4A^2(J^{\parallel} + 2J^{\perp})^2 + 4\bar{h}_1^2 \cos^2(2q\ell) + \frac{4}{H_0^2} h_2^4 \sin^4(q\ell) \right. \\
&\quad + 8A(J^{\parallel} + 2J^{\perp})\bar{h}_1 \cos(2q\ell) + 8\frac{A}{H_0}(J^{\parallel} + 2J^{\perp})h_2^2 \sin^2(q\ell) \\
&\quad \left. + 8\frac{1}{H_0}\bar{h}_1 h_2^2 \cos(2q\ell) \sin^2(q\ell) \right\} \\
&= 4A^2(J^{\parallel} + 2J^{\perp})^2 + 2\bar{h}_1^2 + \frac{3}{2H_0^2} h_2^4 + \frac{4A}{H_0}(J^{\parallel} + 2J^{\perp})h_2^2 - \frac{2}{H_0}\bar{h}_1 h_2^2 \quad (\text{E.0.38})
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\frac{1}{N_z} \sum_{\ell} S_{\ell} U_{\ell} &= \frac{1}{N_z} \sum_{\ell} \{ 2h_1 \cos(q\ell) \} \times \left\{ 2\bar{h}_1 \cos(3q\ell) + \frac{4}{H_0} h_2 \bar{h}_2 \sin(q\ell) \sin(2q\ell) \right. \\
&\quad \left. - \frac{4}{H_0^2} h_1 \cos(q\ell) [h_1^2 \cos^2(q\ell) + h_2^2 \sin^2(q\ell)] + \frac{4}{H_0^2} h_1^3 \cos^3(q\ell) \right\} \\
&= \frac{1}{N_z} \sum_{\ell} \left\{ 4h_1 \bar{h}_1 \cos(q\ell) \cos(3q\ell) + \frac{8}{H_0} h_1 h_2 \bar{h}_2 \cos(q\ell) \sin(q\ell) \sin(2q\ell) \right. \\
&\quad \left. - \frac{8}{H_0^2} h_1^2 \cos^2(q\ell) [h_1^2 \cos^2(q\ell) + h_2^2 \sin^2(q\ell)] + \frac{8}{H_0^2} h_1^4 \cos^4(q\ell) \right\} \\
&= \frac{2}{H_0} h_1 h_2 \bar{h}_2 - \frac{3}{H_0^2} h_1^4 - \frac{1}{H_0^2} h_1^2 h_2^2 + \frac{3}{H_0^2} h_1^4 \\
&= \frac{2}{H_0} h_1 h_2 \bar{h}_2 - \frac{1}{H_0^2} h_1^2 h_2^2 \quad (\text{E.0.39})
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\frac{1}{N_z} \sum_{\ell} (S_{\ell})^2 T_{\ell} &= \frac{1}{N_z} \sum_{\ell} [2h_1 \cos(q\ell)]^2 \times \left\{ 2A(J^{\parallel} + 2J^{\perp}) + 2\bar{h}_1 \cos(2q\ell) + \frac{2}{H_0} h_2^2 \sin^2(q\ell) \right\} \\
&= \frac{1}{N_z} \sum_{\ell} \left\{ 8Ah_1^2(J^{\parallel} + 2J^{\perp}) \cos^2(q\ell) + 8h_1^2 \bar{h}_1 \cos^2(q\ell) \cos(2q\ell) \right. \\
&\quad \left. + \frac{8}{H_0} h_1^2 h_2^2 \cos^2(q\ell) \sin^2(q\ell) \right\} \\
&= 4Ah_1^2(J^{\parallel} + 2J^{\perp}) + 2h_1^2 \bar{h}_1 + \frac{1}{H_0} h_1^2 h_2^2 \quad (\text{E.0.40})
\end{aligned}$$

$$\frac{1}{N_z} \sum_{\ell} (S_{\ell})^4 = \frac{1}{N_z} \sum_{\ell} [2h_1 \cos(q\ell)]^4 = 6h_1^4 \quad (\text{E.0.41})$$

より、

$$\begin{aligned}
a_4^{(1)} &= -\frac{M_0}{N_z} \sum_{\ell} V_{\ell} - \frac{1}{2N_z} \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \sum_{\ell} (T_{\ell})^2 - \frac{1}{N_z} \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \sum_{\ell} S_{\ell} U_{\ell} - \frac{1}{2N_z} \frac{\partial^2 M_0}{\partial H_0^2} \sum_{\ell} (S_{\ell})^2 T_{\ell} - \frac{1}{24N_z} \frac{\partial^3 M_0}{\partial H_0^3} \sum_{\ell} (S_{\ell})^4 \\
&= -M_0 \left\{ 2B(J^{\parallel} + 2J^{\perp}) - \frac{2A}{H_0^2} (J^{\parallel} + 2J^{\perp}) h_2^2 - \frac{3}{4H_0^3} h_2^4 + \frac{1}{H_0^3} h_1^2 h_2^2 - \frac{2}{H_0^2} h_1 h_2 \bar{h}_2 + \frac{1}{H_0^2} h_2^2 \bar{h}_1 + \frac{1}{H_0} \bar{h}_2^2 \right\} \\
&\quad - \frac{1}{2} \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \left\{ 4A^2 (J^{\parallel} + 2J^{\perp})^2 + 2\bar{h}_1^2 + \frac{3}{2H_0^2} h_2^4 + \frac{4A}{H_0} (J^{\parallel} + 2J^{\perp}) h_2^2 - \frac{2}{H_0} \bar{h}_1 h_2^2 \right\} \\
&\quad - \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \left\{ \frac{2}{H_0} h_1 h_2 \bar{h}_2 - \frac{1}{H_0^2} h_1^2 h_2^2 \right\} \\
&\quad - \frac{1}{2} \frac{\partial^2 M_0}{\partial H_0^2} \left\{ 4A h_1^2 (J^{\parallel} + 2J^{\perp}) + 2h_1^2 \bar{h}_1 + \frac{1}{H_0} h_1^2 h_2^2 \right\} \\
&\quad - \frac{1}{24} \frac{\partial^3 M_0}{\partial H_0^3} 6h_1^4 \\
&= -2BM_0 (J^{\parallel} + 2J^{\perp}) + \frac{2AM_0}{H_0^2} (J^{\parallel} + 2J^{\perp}) h_2^2 + \frac{3M_0}{4H_0^3} h_2^4 - \frac{M_0}{H_0^3} h_1^2 h_2^2 + \frac{2M_0}{H_0^2} h_1 h_2 \bar{h}_2 - \frac{M_0}{H_0^2} h_2^2 \bar{h}_1 - \frac{M_0}{H_0} \bar{h}_2^2 \\
&\quad - \frac{\partial M_0}{\partial H_0} 2A^2 (J^{\parallel} + 2J^{\perp})^2 - \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \bar{h}_1^2 - \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \frac{3}{4H_0^2} h_2^4 - \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \frac{2A}{H_0} (J^{\parallel} + 2J^{\perp}) h_2^2 + \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \frac{1}{H_0} \bar{h}_1 h_2^2 \\
&\quad - \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \frac{2}{H_0} h_1 h_2 \bar{h}_2 + \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \frac{1}{H_0^2} h_1^2 h_2^2 \\
&\quad - \frac{\partial^2 M_0}{\partial H_0^2} 2A h_1^2 (J^{\parallel} + 2J^{\perp}) - \frac{\partial^2 M_0}{\partial H_0^2} h_1^2 \bar{h}_1 - \frac{1}{2H_0} \frac{\partial^2 M_0}{\partial H_0^2} h_1^2 h_2^2 \\
&\quad - \frac{1}{4} \frac{\partial^3 M_0}{\partial H_0^3} h_1^4 \\
&= -\frac{\partial M_0}{\partial H_0} 2A^2 (J^{\parallel} + 2J^{\perp})^2 - 2BM_0 (J^{\parallel} + 2J^{\perp}) - \frac{\partial^2 M_0}{\partial H_0^2} 2A (J^{\parallel} + 2J^{\perp}) h_2^2 \\
&\quad + \frac{2AM_0}{H_0^2} (J^{\parallel} + 2J^{\perp}) h_2^2 - \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \frac{2A}{H_0} (J^{\parallel} + 2J^{\perp}) h_2^2 - \frac{1}{4} \frac{\partial^3 M_0}{\partial H_0^3} h_1^4 + \frac{3M_0}{4H_0^3} h_2^4 - \frac{3}{4H_0^2} \frac{\partial M_0}{\partial H_0} h_2^4 \\
&\quad - \frac{M_0}{H_0^3} h_1^2 h_2^2 - \frac{1}{2H_0} \frac{\partial^2 M_0}{\partial H_0^2} h_1^2 h_2^2 + \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \frac{1}{H_0^2} h_1^2 h_2^2 \\
&\quad - \frac{\partial^2 M_0}{\partial H_0^2} h_2^2 \bar{h}_1 - \frac{M_0}{H_0^2} h_2^2 \bar{h}_1 + \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \frac{1}{H_0} \bar{h}_1 h_2^2 + \frac{2M_0}{H_0^2} h_1 h_2 \bar{h}_2 - \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \frac{2}{H_0} h_1 h_2 \bar{h}_2 - \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \bar{h}_1^2 - \frac{M_0}{H_0} \bar{h}_2^2 \\
&= -\frac{\partial M_0}{\partial H_0} 2A^2 (J^{\parallel} + 2J^{\perp})^2 - 2BM_0 (J^{\parallel} + 2J^{\perp}) - \frac{\partial^2 M_0}{\partial H_0^2} 2A (J^{\parallel} + 2J^{\perp}) h_2^2 \\
&\quad + \left(\frac{2M_0}{H_0^2} - \frac{2}{H_0} \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \right) A (J^{\parallel} + 2J^{\perp}) h_2^2 - \frac{1}{4} \frac{\partial^3 M_0}{\partial H_0^3} h_1^4 + \left(\frac{3M_0}{4H_0^3} - \frac{3}{4H_0^2} \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \right) h_2^4 \\
&\quad - \left(\frac{M_0}{H_0^3} + \frac{1}{2H_0} \frac{\partial^2 M_0}{\partial H_0^2} - \frac{1}{H_0^2} \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \right) h_1^2 h_2^2 \\
&\quad - \frac{\partial^2 M_0}{\partial H_0^2} h_2^2 \bar{h}_1 + \left(-\frac{M_0}{H_0^2} + \frac{1}{H_0} \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \right) h_2^2 \bar{h}_1 + \left(\frac{2M_0}{H_0^2} - \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \frac{2}{H_0} \right) h_1 h_2 \bar{h}_2 - \frac{\partial M_0}{\partial H_0} \bar{h}_1^2 - \frac{M_0}{H_0} \bar{h}_2^2
\end{aligned} \tag{E.0.42}$$

よって、

$$\begin{aligned}
a_4^{(1)} = & -\frac{\partial M_0}{\partial H_0} 2A^2(J^\parallel + 2J^\perp)^2 - 2BM_0(J^\parallel + 2J^\perp) \\
& -\frac{\partial^2 M_0}{\partial H_0^2} 2A(J^\parallel + 2J^\perp)h_1^2 + \left(\frac{2M_0}{H_0^2} - \frac{2}{H_0} \frac{\partial M_0}{\partial H_0}\right) A(J^\parallel + 2J^\perp)h_2^2 \\
& -\frac{1}{4} \frac{\partial^3 M_0}{\partial H_0^3} h_1^4 + \left(\frac{3M_0}{4H_0^3} - \frac{3}{4H_0^2} \frac{\partial M_0}{\partial H_0}\right) h_2^4 - \left(\frac{M_0}{H_0^3} + \frac{1}{2H_0} \frac{\partial^2 M_0}{\partial H_0^2} - \frac{1}{H_0^2} \frac{\partial M_0}{\partial H_0}\right) h_1^2 h_2^2 \\
& -\frac{\partial^2 M_0}{\partial H_0^2} h_1^2 \bar{h}_1 + \left(-\frac{M_0}{H_0^2} + \frac{1}{H_0} \frac{\partial M_0}{\partial H_0}\right) h_2^2 \bar{h}_1 + \left(\frac{2M_0}{H_0^2} - \frac{2}{H_0} \frac{\partial M_0}{\partial H_0}\right) h_1 h_2 \bar{h}_2 \\
& -\frac{\partial M_0}{\partial H_0} \bar{h}_1^2 - \frac{M_0}{H_0} \bar{h}_2^2
\end{aligned} \tag{E.0.43}$$

を得る。

一方で、自由エネルギーの二項目の方も、

$$\begin{aligned}
\frac{1}{N_z} \sum_{\ell} \frac{(\mathbf{H}_{\ell}^{\text{eff}} - H\hat{\mathbf{x}}) \cdot \mathbf{M}_{\ell}}{2} &= \frac{1}{2N_z} \sum_{\ell} \left\{ [(H_{\ell}^{\text{eff}})^x - H] M_{\ell}^x + (H_{\ell}^{\text{eff}})^y M_{\ell}^y \right\} \\
&\equiv f_0^{(2)} + a_1^{(2)} \xi + a_2^{(2)} \xi^2 + a_3^{(2)} \xi^3 + a_4^{(2)} \xi^4 + \mathcal{O}(\xi^5)
\end{aligned} \tag{E.0.44}$$

とおく。ここで、

$$\begin{aligned}
[(H_{\ell}^{\text{eff}})^x - H] M_{\ell}^x &= \left\{ 2J^\parallel M_0 + 4J^\perp M_0 + 2h_1 \cos(q\ell) \xi + (2J^\parallel A + 4J^\perp A) \xi^2 + 2\bar{h}_1 \cos(2q\ell) \xi^2 \right. \\
&\quad \left. + 2\bar{\bar{h}}_1 \cos(3q\ell) \xi^3 + (2J^\parallel B + 4J^\perp B) \xi^4 + 2\bar{\bar{\bar{h}}}_1 \cos(4q\ell) \xi^4 + \dots \right\} \\
&\quad \times \left\{ M_0 + \xi \sigma_1 \cos(q\ell) + \xi^2 [A + \bar{\sigma}_1 \cos(2q\ell)] + \xi^3 \bar{\bar{\sigma}}_1 \cos(3q\ell) \right. \\
&\quad \left. + \xi^4 [B + \bar{\bar{\bar{\sigma}}}_1 \cos(4q\ell)] + \dots \right\} \\
&= (2J^\parallel M_0 + 4J^\perp M_0) M_0 + (2J^\parallel M_0 + 4J^\perp M_0) \xi \sigma_1 \cos(q\ell) + 2M_0 h_1 \cos(q\ell) \xi \\
&\quad + (2J^\parallel M_0 + 4J^\perp M_0) [A + \bar{\sigma}_1 \cos(2q\ell)] \xi^2 + 2h_1 \sigma_1 \cos^2(q\ell) \xi^2 \\
&\quad + M_0 [2J^\parallel A + 4J^\perp A] \xi^2 + 2M_0 \bar{h}_1 \cos(2q\ell) \xi^2 \\
&\quad + [A + \bar{\sigma}_1 \cos(2q\ell)] 2h_1 \cos(q\ell) \xi^3 + (2J^\parallel M_0 + 4J^\perp M_0) \bar{\bar{\sigma}}_1 \cos(3q\ell) \xi^3 \\
&\quad + (2J^\parallel A + 4J^\perp A) \sigma_1 \cos(q\ell) \xi^3 + 2\bar{h}_1 \sigma_1 \cos(q\ell) \cos(2q\ell) \xi^3 + 2M_0 \bar{\bar{\bar{h}}}_1 \cos(3q\ell) \xi^3 \\
&\quad + (2J^\parallel M_0 + 4J^\perp M_0) [B + \bar{\bar{\bar{\sigma}}}_1 \cos(4q\ell)] \xi^4 + 2h_1 \bar{\bar{\sigma}}_1 \cos(q\ell) \cos(3q\ell) \xi^4 \\
&\quad + [A + \bar{\sigma}_1 \cos(2q\ell)] (2J^\parallel A + 4J^\perp A) \xi^4 + [A + \bar{\sigma}_1 \cos(2q\ell)] 2\bar{h}_1 \cos(2q\ell) \xi^4 \\
&\quad + \bar{\bar{\bar{h}}}_1 \sigma_1 \cos(q\ell) \cos(3q\ell) \xi^4 + M_0 (2J^\parallel B + 4J^\perp B) \xi^4 + 2M_0 \bar{\bar{\bar{\bar{h}}}}_1 \cos(4q\ell) \xi^4 + \mathcal{O}(\xi^5)
\end{aligned} \tag{E.0.45}$$

$$\begin{aligned}
(H_\ell^{\text{eff}})^y M_\ell^y &= \left\{ -2h_2 \sin(q\ell)\xi - \bar{h}_2 \sin(2q\ell)\xi^2 - 2\bar{\bar{h}}_2 \sin(3q\ell)\xi^3 - 2\bar{\bar{\bar{h}}}_2 \sin(4q\ell)\xi^4 + \dots \right\} \\
&\quad \times \left[-\xi\sigma_2 \sin(q\ell) - \xi^2\bar{\sigma}_2 \sin(2q\ell) - \xi^3\bar{\bar{\sigma}}_2 \sin(3q\ell) - \xi^4\bar{\bar{\bar{\sigma}}}_2 \sin(4q\ell) + \dots \right] \\
&= 2h_2\sigma_2 \sin(q\ell)\xi^2 + 2h_2\bar{\sigma}_2 \sin(q\ell) \sin(2q\ell)\xi^3 + 2\bar{h}_2\sigma_2 \sin(q\ell) \sin(2q\ell)\xi^3 \\
&\quad + 2\bar{\bar{h}}_2\bar{\sigma}_2 \sin^2(2q\ell)\xi^4 + 2h_2\bar{\bar{\sigma}}_2 \sin(q\ell) \sin(3q\ell)\xi^4 + 2\bar{\bar{\bar{h}}}_2\sigma_2 \sin(q\ell) \sin(3q\ell)\xi^4 + \mathcal{O}(\xi^5)
\end{aligned} \tag{E.0.46}$$

より、

$$f_0^{(2)} = \frac{1}{2}(2J^\parallel M_0 + 4J^\perp M_0)M_0 = \frac{1}{2}(H_0 - H)M_0 \tag{E.0.47}$$

$$a_1^{(2)} = \frac{1}{2N_z} \sum_\ell (2J^\parallel M_0 + 4J^\perp M_0)\sigma_1 \cos(q\ell) + 2M_0 h_1 \cos(q\ell) = 0 \tag{E.0.48}$$

$$\begin{aligned}
a_2^{(2)} &= \frac{1}{2N_z} \sum_\ell (2J^\parallel M_0 + 4J^\perp M_0)[A + \bar{\sigma}_1 \cos(2q\ell)] + 2h_1\sigma_1 \cos^2(q\ell) \\
&\quad + M_0[2J^\parallel A + 4J^\perp A] + 2M_0 \cos(2q\ell)\bar{h}_1 + 2h_2\sigma_2 \sin^2(q\ell) \\
&= (J^\parallel M_0 + 2J^\perp M_0)A + \frac{1}{2}h_1\sigma_1 + M_0(J^\parallel A + 2J^\perp A) + \frac{1}{2}h_2\sigma_2 \\
&= 2(J^\parallel + 2J^\perp)AM_0 + \frac{1}{2}(J^\parallel \cos q + 2J^\perp - 2D\sigma_1\sigma_2 \sin q)
\end{aligned} \tag{E.0.49}$$

$$\begin{aligned}
a_3^{(2)} &= \frac{1}{2N_z} \sum_\ell \left\{ [A + \bar{\sigma}_1 \cos(2q\ell)]2h_1 \cos(q\ell) + (2J^\parallel A + 4J^\perp A)\bar{\bar{\sigma}}_1 \cos(3q\ell) \right. \\
&\quad + (2J^\parallel A + 4J^\perp A)\sigma_1 \cos(q\ell) + 2\bar{h}_1\sigma_1 \cos(q\ell) \cos(2q\ell) + 2M_0\bar{\bar{h}}_1 \cos(3q\ell) \\
&\quad \left. + 2h_2\bar{\sigma}_2 \sin(q\ell) \sin(2q\ell) + 2\bar{h}_2\sigma_2 \sin(q\ell) \sin(2q\ell) \right\} = 0
\end{aligned} \tag{E.0.50}$$

$$\begin{aligned}
a_4^{(2)} &= \frac{1}{2N_z} \sum_\ell (2J^\parallel M_0 + 4J^\perp M_0)[B + \bar{\bar{\sigma}}_1 \cos(4q\ell)] + 2h_1\bar{\sigma}_1 \cos(q\ell) \cos(3q\ell) \\
&\quad + [A + \bar{\sigma}_1 \cos(2q\ell)](2J^\parallel A + 4J^\perp A) + [A + \bar{\sigma}_1 \cos(2q\ell)]2\bar{h}_1 \cos(2q\ell) \\
&\quad + 2\bar{\bar{h}}_1\sigma_1 \cos(q\ell) \cos(3q\ell) + M_0(2J^\parallel B + 4J^\perp B) + 2M_0\bar{\bar{h}}_1 \cos(4q\ell) \\
&\quad + 2\bar{h}_2\bar{\sigma}_2 \sin^2(2q\ell) + 2h_2\bar{\bar{\sigma}}_2 \sin(q\ell) \sin(3q\ell) + 2\bar{\bar{\bar{h}}}_2\sigma_2 \sin(q\ell) \sin(3q\ell) \\
&= (J^\parallel + 2J^\perp)BM_0 + A^2(J^\parallel + 2J^\perp) + \frac{1}{2}\bar{h}_1\bar{\sigma}_1 + (J^\parallel + 2J^\perp)BM_0 + \frac{1}{2}\bar{h}_2\bar{\sigma}_2 \\
&= 2BM_0(J^\parallel + 2J^\perp) + A^2(J^\parallel + 2J^\perp) + \frac{1}{2}\bar{h}_1\bar{\sigma}_1 + \frac{1}{2}\bar{h}_2\bar{\sigma}_2
\end{aligned} \tag{E.0.51}$$

以上より、自由エネルギーを展開したとき、一次および三次の係数は0となり、二次の係数は、

$$\begin{aligned}
a_2 &= -M_0(2J^{\parallel}A + 4J^{\perp}A) - \frac{\partial M_0}{\partial H_0}h_1^2 - \frac{M_0}{H_0}h_2^2 + 2(J^{\parallel} + 2J^{\perp})AM_0 \\
&\quad + \frac{1}{2}(J^{\parallel} \cos q + 2J^{\perp} - 2D\sigma_1\sigma_2 \sin q) \\
&= -\frac{\partial M_0}{\partial H_0}h_1^2 - \frac{M_0}{H_0}h_2^2 + \frac{1}{2}(J^{\parallel} \cos q + 2J^{\perp} - 2D\sigma_1\sigma_2 \sin q) \tag{E.0.52}
\end{aligned}$$

四次の係数は、

$$\begin{aligned}
a_4 &= -\frac{\partial M_0}{\partial H_0}2A^2(J^{\parallel} + 2J^{\perp})^2 - 2BM_0(J^{\parallel} + 2J^{\perp}) \\
&\quad - \frac{\partial^2 M_0}{\partial H_0^2}2A(J^{\parallel} + 2J^{\perp})h_1^2 + \left(\frac{2M_0}{H_0^2} - \frac{2}{H_0} \frac{\partial M_0}{\partial H_0}\right)A(J^{\parallel} + 2J^{\perp})h_2^2 \\
&\quad - \frac{1}{4} \frac{\partial^3 M_0}{\partial H_0^3}h_1^4 + \left(\frac{3M_0}{4H_0^3} - \frac{3}{4H_0^2} \frac{\partial M_0}{\partial H_0}\right)h_2^4 - \left(\frac{M_0}{H_0^3} + \frac{1}{2H_0} \frac{\partial^2 M_0}{\partial H_0^2} - \frac{1}{H_0^2} \frac{\partial M_0}{\partial H_0}\right)h_1^2h_2^2 \\
&\quad - \frac{\partial^2 M_0}{\partial H_0^2}h_1^2\bar{h}_1 + \left(-\frac{M_0}{H_0^2} + \frac{1}{H_0} \frac{\partial M_0}{\partial H_0}\right)h_2^2\bar{h}_1 + \left(\frac{2M_0}{H_0^2} - \frac{2}{H_0} \frac{\partial M_0}{\partial H_0}\right)h_1h_2\bar{h}_2 - \frac{\partial M_0}{\partial H_0}\bar{h}_1^2 - \frac{M_0}{H_0}\bar{h}_2^2 \\
&\quad + 2BM_0(J^{\parallel} + 2J^{\perp}) + A^2(J^{\parallel} + 2J^{\perp}) + \frac{1}{2}\bar{h}_1\bar{\sigma}_1 + \frac{1}{2}\bar{h}_2\bar{\sigma}_2 \tag{E.0.53}
\end{aligned}$$

少しだけ整理すると、

$$\begin{aligned}
a_4 &= -2A^2 \frac{\partial M_0}{\partial H_0}(J^{\parallel} + 2J^{\perp})^2 + A^2(J^{\parallel} + 2J^{\perp}) + \frac{1}{2}\bar{h}_1\bar{\sigma}_1 + \frac{1}{2}\bar{h}_2\bar{\sigma}_2 - \frac{\partial M_0}{\partial H_0}\bar{h}_1^2 - \frac{M_0}{H_0}\bar{h}_2^2 \\
&\quad - 2A \frac{\partial^2 M_0}{\partial H_0^2}(J^{\parallel} + 2J^{\perp})h_1^2 + \left(\frac{2M_0}{H_0^2} - \frac{2}{H_0} \frac{\partial M_0}{\partial H_0}\right)A(J^{\parallel} + 2J^{\perp})h_2^2 \\
&\quad - \frac{1}{4} \frac{\partial^3 M_0}{\partial H_0^3}h_1^4 + \left(\frac{3M_0}{4H_0^3} - \frac{3}{4H_0^2} \frac{\partial M_0}{\partial H_0}\right)h_2^4 - \left(\frac{M_0}{H_0^3} + \frac{1}{2H_0} \frac{\partial^2 M_0}{\partial H_0^2} - \frac{1}{H_0^2} \frac{\partial M_0}{\partial H_0}\right)h_1^2h_2^2 \\
&\quad - \frac{\partial^2 M_0}{\partial H_0^2}h_1^2\bar{h}_1 + \left(-\frac{M_0}{H_0^2} + \frac{1}{H_0} \frac{\partial M_0}{\partial H_0}\right)h_2^2\bar{h}_1 + \left(\frac{2M_0}{H_0^2} - \frac{2}{H_0} \frac{\partial M_0}{\partial H_0}\right)h_1h_2\bar{h}_2 \tag{E.0.54}
\end{aligned}$$

となる。

参考文献

- [1] Y. Togawa, Y. Kousaka, K. Inoue and J. Kishine, “Symmetry, Structure, and Dynamics of Monoaxial Chiral Magnets”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **85**, 112001 (2016).
- [2] I. E. Dzyaloshinsky, “A thermodynamic theory of “weak” ferromagnetism of antiferromagnetics”, *J. Phys. Chem. Solids* **4**, 241 (1958).
- [3] T. Moriya, “Anisotropic superexchange interaction and weak ferromagnetism”, *Phys. Rev.* **120**, 91 (1960).
- [4] A. N. Bogdanov, and D. A. Yablonskii “Thermodynamically stable “vortices” in magnetically ordered crystals. The mixed state of magnets”, *Sov. Phys. JETP* **68**, 101 (1989).
- [5] A. Bogdanov, and A. Hubert, “Thermodynamically stable magnetic vortex states in magnetic crystals”, *J. Magn. Magn. Mater.* **138**, 255 (1994).
- [6] A. Bogdanov, and A. Hubert, “The stability of vortex-like structures in uniaxial ferromagnets”, *J. Magn. Magn. Mater.* **195**, 182 (1999).
- [7] N. Nagaosa and Y. Tokura, “Topological properties and dynamics of magnetic skyrmions”, *Nature Nanotech.* **8**, 899 (2013).
- [8] 望月 維人, 永長直人, “磁気スキルミオンが示す特異な熱励起・電流誘起ダイナミクス”, *固体物理* **49**, 125 (2014).
- [9] N. Romming, C. Hanneken, M. Menzel, J. E. Bickel, B. Wolter, K. von Bergmann, A. Kubetzka, R. Wiesendanger, “Writing and Deleting Single Magnetic Skyrmions”, *Science* **341**, 636 (2013).
- [10] N. Romming, A. Kubetzka, C. Hanneken, K. von Bergmann, and R. Wiesendanger, “Field-Dependent Size and Shape of Single Magnetic Skyrmions”, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 177203 (2015).
- [11] B. Lebech, J. Bernhard, and T. Freltoft, “Magnetic structures of cubic FeGe studied by small-angle neutron scattering”, *J. Phys.: Condens. Matter* **1**, 6105 (1989).
- [12] X. Z. Yu, Y. Onose, N. Kanazawa, J. H. Park, J. H. Han, Y. Matsui, N. Nagaosa, and Y. Tokura, “Real-space observation of a two-dimensional skyrmion crystal”, *Nature* **465**, 901 (2010).
- [13] X. Z. Yu, N. Kanazawa, Y. Onose, K. Kimoto, W. Z. Zhang, S. Ishiwata, Y. Matsui, and Y. Tokura, “Near room-temperature formation of a skyrmion crystal in thin-films of the helimagnet FeGe”, *Nature Mater.* **10**, 106 (2011).

-
- [14] D. McGrouther, R. J. Lamb, M. Krajenak, S. McFadzean, S. McVitie, R. L. Stamps, A. O. Leonov, A. N. Bogdanov, and Y. Togawa, “Internal structure of hexagonal skyrmion lattices in cubic helimagnets”, *New J. Phys.* **18** 095004 (2016).
- [15] S. Seki, X. Z. Yu, S. Ishiwata, and Y. Tokura, “Observation of skyrmions in a multiferroic material”, *Science* **336**, 198 (2012).
- [16] S. Buhrandt and L. Fritz, “Skyrmion lattice phase in three-dimensional chiral magnets from Monte Carlo simulations”, *Phys. Rev. B* **88**, 195137 (2013).
- [17] M. N. Wilson, A. B. Butenko, N. Bogdanov, and T. L. Monchesky, “Chiral skyrmions in cubic helimagnet films: The role of uniaxial anisotropy”, *Phys. Rev. B* **89**, 094411 (2014).
- [18] J. Iwasaki, M. Mochizuki and N. Nagaosa, “Current-induced skyrmion dynamics in constricted geometries”, *Nature Nanotech.* **8**, 742 (2013).
- [19] A. O. Leonov, Y. Togawa, T. L. Monchesky, A. N. Bogdanov, J. Kishine, Y. Kousaka, M. Miyagawa, T. Koyama, J. Akimitsu, T. Koyama, K. Harada, S. Mori, D. McGrouther, R. Lamb, M. Krajenak, S. McVitie, R. L. Stamps, and K. Inoue, “Chiral Surface Twists and Skyrmion Stability in Nanolayers of Cubic Helimagnets”, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 087202 (2016).
- [20] A. O. Leonov, T. L. Monchesky, N. Romming, A. Kubetzka, A. N. Bogdanov, and R. Wiesendanger, “The properties of isolated chiral skyrmions in thin magnetic films”, *New J. Phys.* **18**, 065003 (2016).
- [21] V. Laliena and J. Campo, “Stability of skyrmion textures and the role of thermal fluctuations in cubic helimagnets: a new intermediate phase at low temperature”, *Phys. Rev. B* **96**, 134420 (2017).
- [22] S. Mühlbauer, B. Binz, F. Jonietz, D. Pfleiderer, A. Rosch, A. Neubauer, R. Georgii, and P. Böni, “Skyrmion lattice in a chiral magnet”, *Science* **323**, 915 (2009).
- [23] D. Lamago, R. Georgii, C. Pfleiderer, P. Böni, “Magnetic-field induced instability surrounding the A-phase of MnSi: Bulk and SANS measurements”, *Physica B* **385**, 385 (2006).
- [24] S. M. Stishov, A. E. Petrova, S. Khasanov, G. Kh. Panova, A. A. Shikov, J. C. Lashley, D. Wu, and T. A. Lograsso “Magnetic phase transition in the itinerant helimagnet MnSi: Thermodynamic and transport properties”, *Phys. Rev. B* **76**, 052405 (2007).
- [25] C. Pfleiderer, T. Adams, A. Bauer, W. Biberacher, B. Binz, F. Birkelbach, P. Böni, C. Franz, R. Georgii, M. Janoschek, F. Jonietz, T. Keller, R. Ritz, S. Mühlbauer, W. Münzer, A. Neubauer, B. Pedersen and A. Rosch “Skyrmion lattices in metallic and semiconducting B20 transition metal compounds”, *J. Phys.: Condens. Matter* **22**, 164207 (2010).
- [26] M. N. Wilson, E. A. Karhu, A. S. Quigley, U. K. Röbner, A. B. Butenko, A. N. Bogdanov, M. D. Robertson, and T. L. Monchesky, “Extended elliptic skyrmion gratings in epitaxial MnSi thin films”, *Phys. Rev. B* **86**, 144420 (2012).

-
- [27] H. Wilhelm, M. Baenitz, M. Schmidt, U. K. Rößler, A. A. Leonov, and A. N. Bogdanov “Precursor Phenomena at the Magnetic Ordering of the Cubic Helimagnet FeGe”, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 127203 (2011).
- [28] H. Wilhelm, M. Baenitz, M. Schmidt, C. Naylor, R. Lortz, U. K. Rößler, A. A. Leonov, and A. N. Bogdanov “Confinement of chiral magnetic modulations in the precursor region of FeGe”, *J. Phys: Cond. Mat.* **24**, 294204 (2012).
- [29] L. Cevey, H. Wilhelm, M. Schmidt, and R. Lortz “Thermodynamic investigations in the precursor region of FeGe”, *Phys. Status Solidi B* **250**, 650 (2013).
- [30] T. Moriya and T. Miyadai, “Evidence for the helical spin structure due to antisymmetric exchange interaction in $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ ”, *Solid State Commun.* **42**, 209 (1982).
- [31] T. Miyadai, K. Kikuchi, H. Kondo, S. Sakka, M. Arai, and Y. Ishikawa, “Magnetic properties of $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ ”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **52**, 1394 (1983).
- [32] 宮台朝直, “ $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ における長周期ヘリカルスピ構造”, *固体物理* **21**, 794 (1986).
- [33] Y. Togawa, T. Koyama, K. Takayanagi, S. Mori, Y. Kousaka, J. Akimitsu, S. Nishihara, K. Inoue, A. S. Ovchinnikov, and J. Kishine, “Chiral magnetic soliton lattice on a chiral helimagnet”, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 107202 (2012).
- [34] Y. Togawa, T. Koyama, S. Mori, Y. Kousaka, J. Akimitsu, S. Nishihara, K. Inoue, A. S. Ovchinnikov, and J. Kishine, “Chiral Soliton Lattice in Chiral Magnetic Crystal CrNb_3S_6 ”, *J. Jpn. Soc. Powder Powder Metall.* **61** Supplement, No. S1, S34 (2014).
- [35] Y. Togawa, T. Koyama, Y. Nishimori, Y. Matsumoto, S. McVitie, D. McGrouther, R. L. Stamps, Y. Kousaka, J. Akimitsu, S. Nishihara, K. Inoue, I. G. Bostrem, Vl. E. Sinit-syn, A. S. Ovchinnikov, and J. Kishine, “Magnetic soliton confinement and discretization effects arising from macroscopic coherence in a chiral spin soliton lattice”, *Phys. Rev. B* **92**, 220412 (2015).
- [36] I. E. Dzyaloshinskii, “Theory of helicoidal structures in antiferromagnets. I, Nonmetals”, *Sov. Phys. JETP* **19**, 960 (1964).
- [37] I. E. Dzyaloshinskii, “The theory of helicoidal structures in antiferromagnets. II, Metals”, *Sov. Phys. JETP* **20**, 223 (1965).
- [38] I. E. Dzyaloshinskii, “Theory of helicoidal structures in antiferromagnets. III”, *Sov. Phys. JETP* **20**, 665 (1965).
- [39] Yu. A. Izyumov, “Modulated, or long-periodic, magnetic structures of crystals”, *Sov. Phys. Usp.* **27**, 845 (1984).
- [40] J. Kishine, K. Inoue, and Y. Yoshida, “Synthesis, structure and magnetic properties of chiral molecule-based magnets”, *Prog. Theor. Phys. Suppl.* **159**, 82 (2005).
- [41] J. Kishine, and A. S. Ovchinnikov, “Theory of Monoaxial Chiral Helimagnet”, *Solid State Phys.* **66**, 1 (2015).

-
- [42] J. Kishine, K. Inoue, and K. Kikuchi, “Static and dynamical anomalies caused by chiral soliton lattice in molecular-based chiral magnets”, *J. Magn. Magn. Mater.* **310**, 1386 (2007).
- [43] P. G. de Gennes, in *Fluctuations, Instabilities and Phase transitions*, Edited by T. Riste, NATO Advanced Study Institutes Series B Vol. 11 pp. 1-18 (Plenum, New York, 1975).
- [44] “Superconductivity”, Volume 2, Edited by R. D. Parks, Marcel Dekker, Inc., pp. 841-843 (1969).
- [45] B. Schaub and D. Mukamel, “Phase diagrams of systems exhibiting incommensurate structures”, *Phys. Rev. B* **32**, 6385 (1985).
- [46] M. Shinozaki, S. Hoshino, Y. Masaki, J. Kishine, and Y. Kato, “Finite-temperature properties of three-dimensional chiral helimagnets”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **85**, 074710 (2016); *ibid.* **86**, 038001 (2017) (Erratum).
- [47] V. Laliena, J. Campo, J. Kishine, A. S. Ovchinnikov, Y. Togawa, Y. Kousaka, and K. Inoue, “Incommensurate-commensurate transitions in the monoaxial chiral helimagnet driven by the magnetic field”, *Phys. Rev. B* **93**, 134424 (2016).
- [48] V. Laliena, J. Campo, and Y. Kousaka, “Understanding the H - T phase diagram of the mono-axial helimagnet”, *Phys. Rev. B* **94**, 094439 (2016).
- [49] V. Laliena, J. Campo, and Y. Kousaka, “Nucleation, instability, and discontinuous phase transitions in the phase diagram of the monoaxial helimagnet with oblique fields”, *Phys. Rev. B* **95**, 224410 (2017).
- [50] Y. Nishikawa, and K. Hukushima, “Phase transitions and ordering structures of a model of a chiral helimagnet in three dimensions”, *Phys. Rev. B* **94**, 064428 (2016).
- [51] M. Yamashita, “Multisolitons and Soliton Lattices in Sine-Gordon System with Variable Amplitude”, *Prog. Theor. Phys.* **74**, 622 (1985).
- [52] M. Yamashita, O. Tamada “Solitons Pertaining to Phase Boundary between Chiral Smectic C and Smectic C Phases”, *J. Phys. Soc. Jpn* **54**, 2963 (1985).
- [53] M. Yamashita, “First Order Phase Transition Accompanying Soliton Lattices near a Tricritical Point – Chiral Smectic C Liquid Crystal in an Electric Field –”, *J. Phys. Soc. Jpn* **56**, 1414 (1987).
- [54] Y. Nishikawa, and K. Hukushima, “Event-chain Monte Carlo algorithm for continuous spin systems and its application”, *J. Phys.: Conf. Series* **750**, 012014 (2016).
- [55] K. Tsuruta, M. Mito, H. Deguchi, J. Kishine, Y. Kousaka, J. Akimitsu, and K. Inoue, “Phase diagram of the chiral magnet $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ in a magnetic field”, *Phys. Rev. B* **93**, 104402 (2016).
- [56] H. Han, L. Zhang, D. Sapkota, N. Hao, L. Ling, H. Du, L. Pi, C. Zhang, D. G. Mandrus, and Y. Zhang “Tricritical point and phase diagram based on critical scaling in monoaxial chiral helimagnet $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ ”, *Phys. Rev. B* **96**, 094439 (2017).

-
- [57] E. M. Clements, R. Das, L. Li, P. J. Lampen-Kelley, M-H. Phan, V. Keppens, D. Mandrus, and H. Srikanth, “Critical Behavior and Macroscopic Phase Diagram of the Monoaxial Chiral Helimagnet $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ ”, *Scientific Reports* **7**, Article number: 6545 (2017).
- [58] L. Wang, N. Chepiga, D.-K. Ki, L. Li, F. Li, W. Zhu, Y. Kato, O. S. Ovchinnikova, F. Mila, I. Martin, D. Mandrus, and A. F. Morpurgo, “Controlling the Topological Sector of Magnetic Solitons in Exfoliated $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ Crystals”, *Phys. Rev. Lett.* **118**, 257203 (2017).
- [59] M. Mito, H. Ohsumi, K. Tsuruta, Y. Kotani, T. Nakamura, Y. Togawa, M. Shinozaki, Y. Kato, J. Kishine, J. Ohe, Y. Kousaka, J. Akimitsu, and K. Inoue, “Geometrical protection of topological magnetic solitons in micro-processed chiral magnets” *Phys. Rev. B* **97**, 024408 (2018).
- [60] K. Tsuruta, M. Mito, Y. Kousaka, J. Akimitsu, J. Kishine, Y. Togawa, H. Ohsumi, and K. Inoue, “Discrete Change in Magnetization by Chiral Soliton Lattice Formation in the Chiral Magnet $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ ”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **85**, 013707 (2016).
- [61] J. Kishine, I. G. Bostrem, A. S. Ovchinnikov, and V. E. Sinitsyn, “Topological magnetization jumps in a confined chiral soliton lattice”, *Phys. Rev. B* **89**, 014419 (2014).
- [62] M. N. Wilson, E. A. Karhu, D. P. Lake, A. S. Quigley, S. Meynell, A. N. Bogdanov, H. Fritzsche, U. K. Rößler, and T. L. Monchesky, “Discrete helicoidal states in chiral magnetic thin films”, *Phys. Rev. B* **88**, 214420 (2013).
- [63] S. A. Meynell, M. N. Wilson, H. Fritzsche, A. N. Bogdanov, and T. L. Monchesky, “Surface twist instabilities and skyrmion states in chiral ferromagnets”, *Phys. Rev. B* **90**, 014406 (2014).
- [64] M. Uchida, N. Nagaosa, J. P. He, Y. Kaneko, S. Iguchi, Y. Matsui, and Y. Tokura, “Topological spin textures in the helimagnet FeGe”, *Phys. Rev. B* **77**, 184402 (2008).
- [65] P. Schoenherr, J. Müller, L. Köhler, A. Rosch, N. Kanazawa, Y. Tokura, M. Garst, D. Meier “Topological domain walls in helimagnets”, arXiv:1704.06288 (2017).
- [66] A. Dussaux, P. Schoenherr, K. Koumpouras, J. Chico, K. Chang, L. Lorenzelli, N. Kanazawa, Y. Tokura, M. Garst, A. Bergman, C. L. Degen, and D. Meier, “Local dynamics of topological magnetic defects in the itinerant helimagnet FeGe”, *Nat. Commun.* **7**, Article number: 12430 (2016).
- [67] A. Bauer, A. Chacon, M. Wagner, M. Halder, R. Georgii, A. Rosch, C. Pfleiderer, and M. Garst, “Symmetry breaking, slow relaxation dynamics, and topological defects at the field-induced helix reorientation in MnSi”, *Phys. Rev. B* **95**, 024429 (2017).
- [68] A. Yoshimori, “A New Type of Antiferromagnetic Structure in the Rutile Type Crystal”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **14**, 807 (1959).
- [69] 岸根 順一郎, 「カイラルらせん磁性体におけるスピン位相制御の理論」(2007-2010 年度科学研究費補助金研究成果報告書)

-
- [70] J. Kishine, I. G. Bostrem, A. S. Ovchinnikov, and V. E. Sinitsyn, “Coherent sliding dynamics and spin motive force driven by crossed magnetic fields in a chiral helimagnet”, *Phys. Rev. B* **86**, 214426 (2012).
- [71] Y. Miyatake, M. Yamamoto, J. J. Kim, M. Toyonaga, and O. Nagai, “On the implementation of the ‘heat bath’ algorithms for Monte Carlo simulations of classical Heisenberg spin systems”, *J. Phys. C: Solid State Phys.* **19**, 2539 (1986).
- [72] D. Losion, C. L. Qin, K. D. Schotte, and X. F. Jin, “Canonical local algorithms for spin systems: heat bath and Hasting’s methods”, *Euro. Phys. J. B* **41**, 395 (2004).
- [73] K. Hukushima, and K. Nemoto, “Exchange Monte Carlo method and application to spin glass simulations”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **65**, 1604 (1996).
- [74] K. Chen, A. M. Ferrenberg, and D. P. Landau, “Static critical behavior of three-dimensional classical Heisenberg models: A high-resolution Monte Carlo study”, *Phys. Rev. B* **48**, 3249 (1993).
- [75] D. J. Scalapino, Y. Imry, and P. Pincus, “Generalized Ginzburg-Landau theory of pseudo-one-dimensional system”, *Phys. Rev. B* **11**, 2042 (1975).
- [76] N. J. Ghimire, M. A. McGuire, D. S. Parker, B. Sipos, S. Tang, J. -Q. Yan, B. C. Sales, and D. Mandrus, “Magnetic phase transition in single crystals of the chiral helimagnet $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ ”, *Phys. Rev. B* **87**, 104403 (2013).
- [77] B. J. Chapman, A. C. Bornstein, N. J. Ghimire, D. Mandrus, and M. Lee, “Spin structure of the Anisotropic Helimagnet $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ in a Magnetic Field”, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 072405 (2014).
- [78] Y. Togawa, Y. Kousaka, S. Nishihara, K. Inoue, J. Akimitsu, A. S. Ovchinnikov, and J. Kishine, “Interlayer magnetoresistance due to chiral soliton lattice formation in hexagonal chiral magnet CrNb_3S_6 ”, *Phys. Rev. Lett.* **111**, 197204 (2013).
- [79] S. Ohara, T. Yamashita, Y. Mori, and I. Sakamoto, “Transport and magnetic properties of new heavy-fermion antiferromagnet YbNi_3Al_9 ”, *J. Phys.: Conference Series* **273**, 012048 (2011).
- [80] S. Ohara, S. Fukuta, K. Ohta, H. Kono, T. Yamashita, Y. Matsumoto, and J. Yamaura, “Study of chiral structure and magnetism in heavy-fermion $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$ ”, *JPS Conf. Proc.* **3**, 017016 (2014).
- [81] R. Miyazaki, Y. Aoki, R. Higashinaka, H. Sato, T. Yamashita, and S. Ohara, “Heavy quasiparticles formed in the ferromagnetic Yb layers in the Kondo helical magnet YbNi_3Al_9 as revealed by specific-heat measurements”, *Phys. Rev. B* **86**, 155106 (2012).
- [82] T. Yamashita, R. Miyazaki, Y. Aoki, and S. Ohara, “Transport, Thermal, and Magnetic Properties of YbNi_3X_9 (X = Al, Ga): A Newly Synthesized Yb-Based Kondo Lattice System”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **81**, 034705 (2012).

-
- [83] H. Pastoriza, M. F. Goffman, A. Arribère, and F. de la Cruz, “First Order Phase Transition at the Irreversibility Line of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ ”, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 2951 (1994).
- [84] E. Zeldov, D. Majer, M. Konczykowski, V. B. Geshkenbein, V. M. Vinokur, and H. Shtrikman, “Thermodynamic observation of first-order vortex-lattice melting transition in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ ”, *Nature* **375**, 373 (1995).
- [85] P. M. Chaikin, and T. C. Lubensky, “Principles of condensed matter physics”, *Cambridge* (1995) Chapter 4.
- [86] L. Rózsa, A. Deák, E. Simon, R. Yanes, L. Udvardi, L. Szunyogh, and U. Nowak, “Skyrmions with Attractive Interactions in an Ultrathin Magnetic Film”, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 157205 (2016).
- [87] J. C. Loudon, A. O. Leonov, A. N. Bogdanov, M. C. Hatnean, and G. Balakrishnan, “Direct observation of attractive skyrmions and skyrmion clusters in a cubic helimagnet Cu_2OSeO_3 ”, arXiv:1704.06876 (2017).
- [88] A. O. Leonov, “Confinement of skyrmion states in non-centrosymmetric magnets near ordering temperatures”, arXiv:1405.3130 (2014).
- [89] Y. Masaki, and Y. Kato (unpublished).
- [90] 正木祐輔、博士論文、東京大学 (2017).
- [91] 正木祐輔, 加藤雄介 「傾斜磁場下での一軸性キラル磁性体の孤立ソリトンの解析」 日本物理学会 2017 年秋季大会 21pF31-10.
- [92] C. P. Bean and J. D. Livingston, “Surface Barrier in Type-II Superconductors”, *Phys. Rev. Lett.* **12**, 14 (1964).
- [93] P. G. de Gennes, “Superconductivity of metals and alloys”, *Benjamin inc. New York* (1966) pp.76-80.
- [94] J. Kishine and A. S. Ovchinnikov, “Theory of spin resonance in a chiral helimagnet”, *Phys. Rev. B* **79**, 220405 (2009).
- [95] 白鳥紀一, 近桂一郎 「磁性学入門」 裳華房 (2012) 第 8 章.
- [96] T. Matsumura, Y. Kita, K. Kubo, Y. Yoshikawa, S. Michimura, T. Inami, Y. Kousaka, K. Inoue, and S. Ohara, “Chiral Soliton Lattice Formation in Monoaxial Helimagnet $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$ ”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **86**, 124702 (2017).
- [97] K. Adachi, N. Achiwa, and M. Mekata, “Helical magnetic structure in CsCuCl_3 ”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **49**, 545, (1980).
- [98] T. Nikuni and H. Shiba, “Quantum fluctuations and magnetic structures of CsCuCl_3 in high magnetic field”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **62** 3268 (1993).

-
- [99] J. Yonemura, Y. Shimamoto, T. Kida, D. Yoshizawa, Y. Kousaka, S. Nishihara, F. J. T. Goncalves, J. Akimitsu, K. Inoue, M. Hagiwara, Y. Togawa, “Magnetic solitons and magnetic phase diagram of the hexagonal chiral crystal CrNb_3S_6 in oblique magnetic fields”, *Phys. Rev. B* **96**, 184423 (2017).
- [100] J. Kishine, I. V. Proskurin, and A. S. Ovchinnikov, “Tuning Magnetotransport through a Magnetic Kink Crystal in a Chiral Helimagnet”, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 017205 (2011).
- [101] I. G. Bostrem, J. Kishine, and A. S. Ovchinnikov, “Theory of spin current in chiral helimagnets”, *Phys. Rev. B* **78**, 064425 (2008).
- [102] I. G. Bostrem, J. Kishine, and A. S. Ovchinnikov, “Transport spin current driven by the moving kink crystal in a chiral helimagnet”, *Phys. Rev. B* **77**, 132405 (2008).
- [103] A. B. Borisov, J. Kishine, I. G. Bostrem, and A. S. Ovchinnikov, “Magnetic soliton transport over topological spin texture in chiral helimagnet with strong easy-plane anisotropy”, *Phys. Rev. B* **79**, 134436 (2009).
- [104] I. G. Bostrem, J. Kishine, R. V. Lavrov, and A. S. Ovchinnikov, “Hidden Galilean symmetry, conservation laws and emergence of spin current in the soliton sector of chiral helimagnet”, *Phys. Lett. A* **373**, 558 (2009).
- [105] S. Okumura, Y. Kato, and Y. Motome, “Quantum Monte Carlo study of magnetoresistance in a chiral soliton lattice”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **86**, 063701 (2017).
- [106] K. Tokushuku, J. Kishine, and M. Ogata, “Tunable Spin Dynamics in Chiral Soliton Lattice”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **86**, 124701 (2017).
- [107] J. Kishine, I. Proskurin, I. G. Bostrem, A. S. Ovchinnikov, and V. E. Sinitsyn, “Resonant collective dynamics of the weakly pinned soliton lattice in a monoaxial chiral helimagnet”, *Phys. Rev. B* **93**, 054403 (2016).
- [108] D. Yoshizawa, J. Kishine, Y. Kousaka, Y. Togawa, M. Mito, J. Akimitsu, K. Inoue, and M. Hagiwara, “Magnetic resonance in the chiral helimagnet CrNb_3S_6 ”, *Physics Procedia* **75**, 926 (2015).
- [109] S. Fukui, M. Kato, and Y. Togawa, “Effects of chiral helimagnets on vortex states in a superconductor”, *Supercond. Sci. Technol.* **29**, 125008 (2016).