

論文の内容の要旨

論文題目 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

氏名 篠寄 美沙子

カイラル磁性体は、ジャロシンスキー・守谷 (DM) 相互作用で記述される、結晶の空間反転対称性が破れたカイラルな磁性体である。対称性の高い立方晶系のカイラル磁性体 (MnSi, FeGe など) では、DM相互作用が多方向に作用し、磁場中ではスキルミオン (skyrmion) と呼ばれる磁気モーメントの渦構造が形成される[1]。一方、より対称性の低い六方晶系 (CrNb₃S₆) や三方晶系 (YbNi₃Al₉) などのカイラル磁性体では、DM相互作用が一軸方向に強くなり、結晶全体で一様ならせん構造が安定化する。このような一軸性カイラル磁性体を、我々はカイラルらせん磁性体と呼んでいる。らせん軸に垂直に磁場をかけると、らせんの巻きが局在したソリトンが形成され、それが周期的に配置されたカイラルソリトン格子が組まれることが知られている[2]。

カイラルらせん磁性体は、はじめ一次元のカイラルサインゴルドンモデルを用いた研究がジャロシンスキーや岸根らによって行われ、現象論的に有限温度効果が取り入れられている[2,3]。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ギンツブルグ-ランダウ (GL) 理論や平均場近似、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となっている。GL理論は、相転移を理解する上で有効であり、Schaub, Mukamel はより一般の無秩序相-不整合相 (disorder-incommensurate) 転移をする物質全般について、相転移と孤立ソリトンの振る舞いとの関係を明らかにした[4]。一方、転移点を含め、より広いパラメータ領域で有効なのが平均場理論であり、カイラルらせん磁性体 CrNb₃S₆ のパラメータの評価や[5]、斜め磁場を含めたカイラルらせん磁性体の相図などが示されている[6]。しかし、孤立ソリトンの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有限温度カイラルらせん磁性体の完全な理解にはまだ至っていない。

一方、西川・福島は、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、低磁場側・高磁場側に種類の異なる二次転移が存在することを示している[7]。平均場近似やGL理論を用いた解析では、一次転移の存在領域が示されているが[4-6]、これらの解析手法は近似を用いているために、一次転移の存在が保証されている訳ではない。もし一次転移が存在するならば、その観測可能性を評価しておく必要がある。実験的には、ヒステリシスの観測[8]や、磁化の振る舞いの変化[9,10]、エントロピー[11]などの観測によって、一次転移の領域や相転移の性質が変化する臨界点の存在を示唆するものもある。しかし、ヒステリシスに関しては、近年行われた微小試料を用いた実験によると、有限サイズ効果に起因していることが示唆されている[12,13]。カイラルらせん磁性体のヒステリシスと準安定状態の理論は未だ手つかずであり、解明が求められている。

我々は、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構築するために、三次元格子上的モデルを平均場近似によって解析した。カイラルらせん磁性体の相境界は、核生成型 (nucleation-type) の二次転移、一次転移、不安定型 (instability-type) の二次転移の3つの領域に分けられ[14]、これらの相転移の種類と孤立ソリトンの振る舞いが関係している[4] (図.1)。我々は一次転移の領域において、界面エネルギーを評価することにより、一次転移の観測可能な最小の系の大きさを明らかにした。一方で、準安定状態が存在する領域が非常に狭いことなども明らかにし、ヒステリシスの観測によって一次転移の根拠とすることは難しいことを示した。一次転移を捉えるためにはむしろ孤立ソリトンの振る舞いを観測することが重要となる。

また、孤立ソリトンが安定して存在しうる領域を平均場近似によって明らかにし (h_0 ライン)、低温では臨界磁場を超えた高磁場の領域まで孤立ソリトンが存在しうることを示した。実験的にも、転移点より高い磁場領域において、試料の端にソリトンが残っている振る舞いが観測されており[15]、 h_0 ラインを実験的に引くことは可能である。一方、低磁場側においては、 h_0 ラインと相境界とが交差する点が存在する。この交点より高い温度領域における秩序相では、我々がカイラルファン構造と呼ぶ磁気構造が形成されており、その詳しい構造と温度変化、および安定性を議論した。また、カイラルファン構造が出現する領域と、不安定型の二次転移・一次転移の境界である三重臨界点、および一様相における磁気クロスオーバーラインが関連していることを示した。

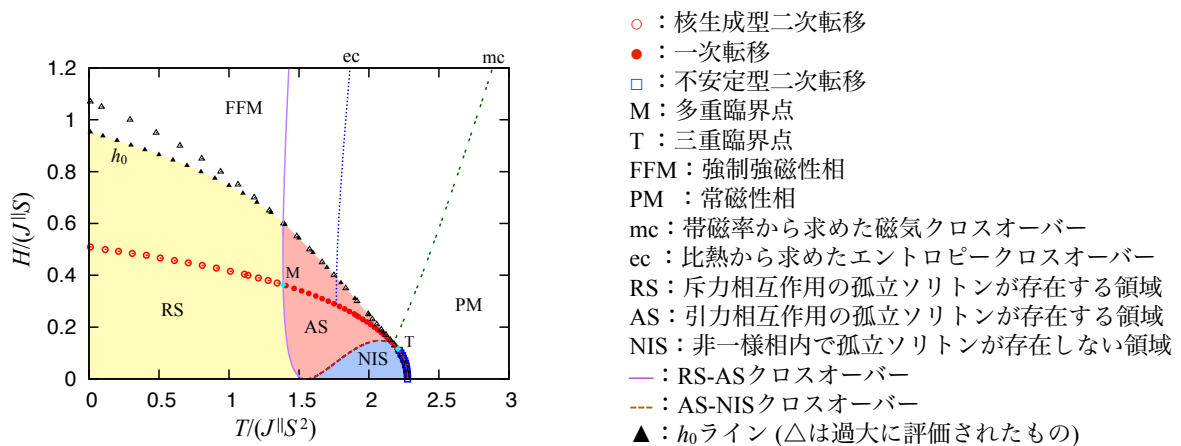


図.1 カイラルらせん磁性体の相図。横軸、縦軸はそれぞれ、らせん軸方向の交換相互作用 J で規格化された温度と磁場。

一方、有限サイズのらせん系を解析する上では、ソリトン数という離散的な要素を常に考えなければならない。本研究で用いた平均場近似のプログラムにおいては、多くの初期状態を用意して、その中から最も低い自由エネルギーを持つ状態を解として採用するアルゴリズムを組んでいる。これは、磁場中で一度ソリトン数が決まってしまうと、その状態が準安定状態として保存されてしまうからである。このプロセスを踏まずに、強磁性状態から自由端条件を課して磁場を徐々に下げていくと、臨界磁場を超えても系にソリトンが侵入せず、大きなヒステリシスが磁化曲線に生じる(図.2 (b))。我々はまず、カイラルサインゴルドンモデルを用いて絶対零度におけるらせんの両端のエネルギーバリアを解析し、ヒステリシスの幅を評価した。この結果は低温において実験[15]と良く一致する。また、有限温度においては、自由エネルギープロファイルに、ソリトンの個数に応じた多数の準安定状態があることを視覚的にあらわにし(図.2 (a))、減磁過程におけるヒステリシスとの関係を明らかにした。らせんの両端の効果によって生じる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広げるものである。

らせんの両端の効果によるヒステリシスの振る舞いは、温度依存性システムサイズ依存性が実験と一致しないことや、増磁過程を再現できないことなど、いくつかの問題を浮き彫りにした。そこで、磁壁 (domain wall) を含む状態を中間状態としてソリトン数を変化させるプロセスを新たに考えた。我々は磁壁の存在する状態を生成することに成功し、磁壁の生成・消滅過程が滑らかで、磁壁が移動することによってソリトン数を変化させるプロセスを示した。また、磁壁の大きさの相互作用依存性を解析し、らせんに垂直な面内の交換相互作用と、DM相互作用、およびオンサイトで働く異方性 (anisotropy) が磁壁の大きさを決めていることを明らかにした。また、磁壁が自由エネルギーに多数の準安定状態を作ることを示し、エネルギーバリアを評価した。

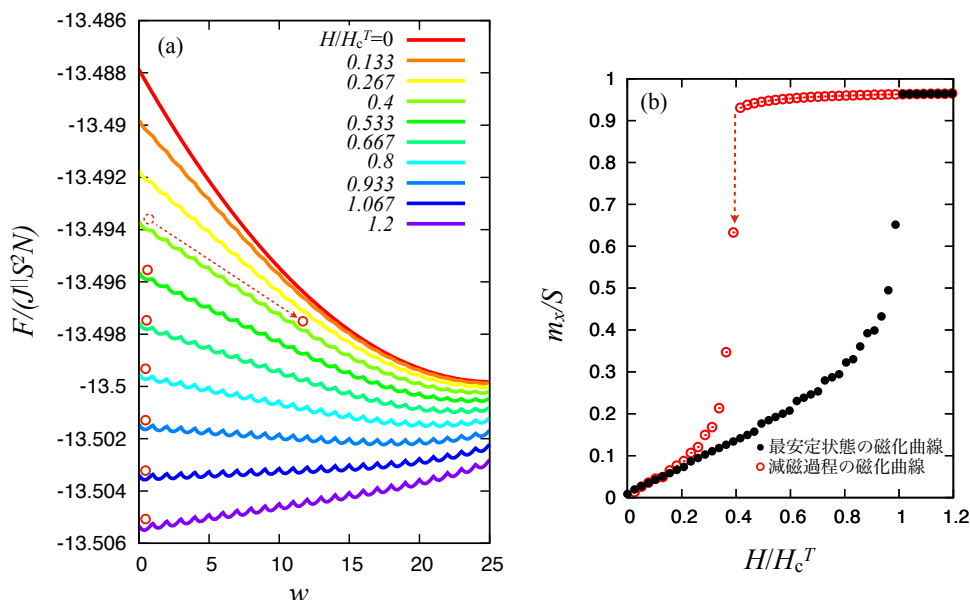


図.2 (a) 自由エネルギーのソリトン数依存性をいくつかの磁場に対してとったもの。赤○は、減磁の際に系がとる状態を模式的に示したもの。 $H/H_c^T \sim 0.4$ において、 $w \sim 0$ におけるエネルギーバリアが消失し、系は新たな準安定状態へと緩和する。(b) 赤○は磁化曲線に現れる減磁過程のプロセス。黒●は各磁場においてエネルギーが最小の状態の磁化をプロットしたもの。

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。カイラルらせん磁性体は、交換相互作用とDM相互作用の競合という単純な模型で良く記述できる系であるが、平均場近似の範囲内でも多彩な物性が発現する。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、孤立ソリトンといったトポロジカルな構造の振る舞いが相転移の性質を決定する。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、無限大の傾きを持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。

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[6]や、スキルミオンの相図[16]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ある。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、第二種超伝導体における量子渦に対しても同様の解析が行われているなど[17]、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。

[1] N. Nagaosa, and Y. Tokura, *Nature Nanotech.* **8**, 899 (2013).

[2] J. Kishine, *et al.*, *PTP suppl.* **159**, 82 (2005).

[3] I. E. Dzyaloshinskii, *Sov. Phys. JETP* **20**, 665 (1965).

[4] M. Schaub, and D. Mukamel, *PRB* **32**, 6385 (1985).

[5] M. Shinozaki, *et al.*, *JPSJ* **85**, 074710 (2016); *ibid.* **86**, 038001 (2017) (Erratum).

[6] V. Laliena, *et al.*, *PRB* **93**, 134424 (2016); *ibid.* **94**, 094439 (2016); *ibid.* **95**, 224410 (2017).

[7] Y. Nishikawa, and K. Hukushima, *PRB* **94**, 064428 (2016).

[8] T. Moriya, and T. Miyadai, *Solid State Commun.* **42**, 209 (1982).

[9] K. Tsuruta, *et al.* *PRB* **93**, 104402 (2016).

[10] H. Han, *et al.*, *PRB* **96**, 094439 (2017).

[11] E. M. Clements, *et al.*, *Nature Scientific Reports* **7**, 6545 (2017).

[12] L. Wang, *et al.*, *PRL* **118**, 257203 (2017).

[13] M. Mito, *et al.* *PRB* **97**, 024408 (2018).

[14] P. G. de Gennes, *NATO Advanced Study Institutes Series B* **11**, 1 (1975).

[15] Y. Togawa, *et al.*, *PRB* **92**, 220412 (2015).

[16] A. O. Leonov, *arXiv:1405.3130* (2014).

[17] C. P. Bean, and J. D. Livingston, *PRL* **12**, 14 (1964).