

令和 6 年 6 月 25 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20H01852

研究課題名(和文) 現実のスピングラス物質におけるレプリカ対称性の破れの実験的検証

研究課題名(英文) Experimental verification of replica-symmetry-breaking in real spin glasses

研究代表者

田畑 吉計 (Tabata, Yoshikazu)

京都大学・工学研究科・准教授

研究者番号：00343244

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,900,000円

研究成果の概要(和文)：本課題では、現実のスピングラス(SG)物質におけるレプリカ対称性の破れ(RSB)を、スピン配列の重なり分布関数 $P(q)$ を観測することで検証することを目的とし、(I)磁気応答測定による間接的観測と、(II)スピン偏極STMによる直接観測を目指した研究を行った。主な成果として、(I)については、無限時間極限における零磁場冷却と磁場中冷却磁化率の分岐の観測、レプリカ指数及びカオス指数の決定、などを行い、RKKYイジングSGにおけるRSBを強く示す結果を得た。(II)に関しては、スピン偏極STM測定を低温で行うための整備をし、RKKYイジングSG物質のランダムなスピン配列の実空間測定を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

レプリカ対称性の破れ(RSB)は、幅広いクラスの「ランダムな秩序」を特徴付ける普遍的な概念として理解され、その重要性から、スピングラスの理論で最初にこの概念を提唱したG. Parisiは、2021年のノーベル物理学賞に輝いている。

一方で、平均場モデルのような非現実的なモデルではなく、現実の物質でRSBが本当に起こっているかどうかについては否定的な意見も多く、全くの未解決問題である。本課題の成果は、実際のスピングラス物質でRSBが起こっていることを強く支持するものであり、ランダムな秩序の理解に大きく貢献するものと言える。

研究成果の概要(英文)：In this project, we aimed to verify replica symmetry breaking (RSB) in real spin glass (SG) materials by experimentally observing the overlap distribution function of spin arrangements $P(q)$. For this purpose, we conducted research aiming at (I) the indirect observation by magnetic response measurements and (II) the direct observation by spin-polarized STM. The main results of (I) were the observation of the bifurcation of the magnetic susceptibility in the infinite time limit under zero-field cooling and under magnetic field cooling, the determination of the replicon exponent and the chaos exponent, etc., which strongly indicated the RSB in the RKKY Ising SG. As for (II), we prepared the equipment to perform the spin-polarized STM measurements at low temperatures and performed the real-space observations of random spin arrangements in the RKKY Ising SG materials.

研究分野：磁性

キーワード：スピングラス レプリカ対称性の破れ 磁化緩和測定 磁気ノイズ測定 スピン偏極STM

1. 研究開始当初の背景

スピングラスは、正負のスピン間相互作用がランダムに分布したランダムスピン系の低温秩序状態であり、自然界に広く見られるガラス様状態の典型例の一つとして知られている。1970年代に希薄磁性合金で発見されて以来、統計力学的な興味から幅広く研究がされてきた[1]。そのスピングラス研究の最も重要な結果が、平均場理論から生まれた「レプリカ対称性の破れ(RSB)」の概念である。RSBとは、系の複製(レプリカ)を複数用意してそれぞれを熱平衡化させた場合に、実現する安定なスピン配列が一意に定まらない状態を指す。これは、系がもともと持っているはずの複製(レプリカ)間の対称性が破れてしまい、互いに自明な対称操作(例えば、全スピン反転)では結び付けられない無数のスピン配列が安定状態となることを意味し、スピンの各々乱雑な方向を向いたまま凍結したスピングラス状態は、「レプリカ対称性が破れた」秩序状態」として意味する。RSBはスピングラスだけではなく、一般のガラス状態や乱雑な媒質による光の誘導輻射(ランダムレーザー)の光強度分布[2]、ランダムポテンシャル中を運動するブラウン粒子の軌跡[3]、深層ニューラルネットワーク[4]など、極めて幅広い分野のランダム秩序を特徴づける普遍的な概念であることが理解されてきており、スピングラスの理論で最初にこの概念を提唱した功績で、G. Parisiは2021年のノーベル物理学賞に輝いている。

一方で、RSB概念の発端となったスピングラス分野に立ち戻ると、現実のスピングラス物質でRSBが起こっているかどうかについては多くの疑問が出されていた。平均場理論は全結合モデルや無限次元系といった非現実的なモデルでは正しいが、現実的なモデル(3次元系、短距離あるいは距離によって減衰する型の現実的な相互作用)にそのまま適用して良いかは分からないからである。実際、数値計算などではむしろRSBを否定する結果が(特に、短距離相互作用が働くイジング系において)多く報告されてきた[5]。このレプリカ対称(RS)なスピングラス秩序は、スピン配列はランダムではあるものの、スピンがもつ自明な対称性(イジングスピンの場合は \mathbb{Z}_2 対称性、古典的な等方ハイゼンベルグスピンの場合は $\text{SO}(3)$ 対称性)のみが破れた、強磁性や反強磁性と同様の秩序状態である。また、RSスピングラスとRSBスピングラスは上部臨界次元($d_u = 6$)で入れ替わることも数値計算で示唆されている[6]。一方で、 d_u 以下でもRSBが起こっていることを主張する結果[7]や、 d_u の上下に関わらず有限次元であればRSBは起こらないと主張する結果[8]もあり、未だ激しい論争が行われている。

[1] K. Binder and A. P. Young, Rev. Mod. Phys. 58, 801 (1988), H. Kawamura and T. Taniguchi, “Spin Glasses” Handbook of Magnetic Materials Vol.24 (Elsevier 2015), E. Vincent and V. Dupuis, “Frustrated Materials and Ferroic Glasses” pp 31-56 (Springer 2018). [2] N. Ghofraniha et al., Nature Commun. 6, 6058 (2015). [3] M. Ueda and S. Sasa, Phys. Rev. Lett. 115, 080605 (2015). [4] H. Yoshino, SciPost Phys. Core 2, 005 (2020). [5] 例えば、P. E. Jönsson et al., Phys. Rev. B 71, 180412(R), M. Sasaki et al., Phys. Rev. Lett. 99, 137202 (2007). [6] R. P. Singh and A. P. Young, Phys. Rev. E 96, 012127 (2017). [7] 例えば、R. A. Banos et al., PNAS 109, 6452 (2012). [8] C. Itoi, J. Phys. Soc. Jpn. 90, 033002 (2021).

2. 研究の目的

そこで本課題では、現実のスピングラス物質でRSBが起こっているかどうかを実験的に検証することを目的として研究を行った。

RSBの最も顕著な特徴は、互いに自明な対称操作では結びつけられない無数の安定状態が存在することである。従って、RSBの最も直接的な検証は、熱力学的に実現するスピン配列 $\{S_i^\alpha\}$, $\{S_i^\beta\}$ を観測し、その重なり $q_{\alpha\beta} = (1/N) \sum_i S_i^\alpha S_i^\beta$ の分布関数 $P(q) = \sum_{\alpha,\beta} \delta(q - q_{\alpha\beta})$ を調べることである。もし、レプリカ対称性が保たれていれば、実現するのは互いに自明な対称操作で結びつけられる状態だけなので、重なり分布関数 $P(q)$ はデルタ関数で表される単純かつ自明な形をとる。一方で、もしRSBが起こっていれば、無数の安定状態の存在とそれら状態間の階層的相関を反映し、 $q_0 (= q_{\alpha\alpha})$ から $-q_0$ まで連続的に広がった非自明な形をとるはずである。実験によって $P(q)$ を観測することで、RSBの検証を行った。

3. 研究の方法

スピン配列の重なり分布関数 $P(q)$ を実験的に観測することは、非常に難しい。強磁性や反強磁性などの“通常”の秩序であれば、磁化測定や中性子回折実験による二体のスピン相関の観測によってその秩序変数を観測することができる。しかし、その様な方法では $P(q)$ を観測することが不可能であることは明らかである。本課題では、(1) 磁気応答測定による間接的な $P(q)$ の観測、及び、(2) スピン偏極STMによる直接的な $P(q)$ の観測、を試みた。

(1)については、スピングラス秩序状態における熱平衡化にかかる時間は非常に長く、その磁気

応答 $\chi(t, t_w)$ には非平衡スピングラス相関 $[(S_i(t_w)S_j(t_w))^2]$ の成長に伴うエイジング効果が見られるが、この非平衡スピングラス相関の成長は $P(q)$ の影響を受けるため、磁気応答、特にそのエイジング効果を観測することで、 $P(q)$ を間接的に見ることができる。本課題では、(1a) 長時間極限における零磁場冷却(ZFC)磁化率及び磁場中冷却(FC)磁化率の差の観測、(1b) 磁気応答の磁場に対する非線形性の解析によるレプリコン指数の決定、(1c) 非平衡スピングラス相関長及びスピングラスドメインエネルギー障壁の成長則の決定、(1d) 冷却中エイジングの解析による温度カオス効果の実証とカオス指数の決定、(1e) 非平衡揺動散逸比観測の試み、を行った。

(2)については、スピン偏極した磁性探針を用いた走査型トンネル顕微鏡(STM)を用いて、スピングラス状態のランダムなスピン配列を実空間観測し、観測したスピン配列を使って $P(q)$ を直接評価する手法であり、本課題では、実際のスピングラス物質のスピン配列の観測を可能にするために、低温環境下でスピン偏極 STM 観測を行うための装置開発を行った。

実験は、RKKY 相互作用が働くイジングスピングラス物質 $Dy(Ru_{0.5}Co_{0.5})_2Si_2$ 、及び、カノニカルスピングラス $Au(Mn)$, $Cu(Mn)$ を実験対象として行った。RKKY 相互作用は伝導電子が媒介するスピン間相互作用で、距離の 3 乗に反比例して減衰する型の長距離相互作用である。従って RKKY イジングスピングラスは、平均場理論が正しく RSB 状態が実現する全結合モデルと RSB が(ほぼ)否定されている短距離相互作用系との”間”に相当し、RSB が起こる現実的な系として有望な物質である。実際、RKKY イジングスピングラス物質では、磁場中スピングラス相の存在が実験的に明らかになっており [9]、RSB が実際に起こっていることを強く支持している。また、カノニカルスピングラスは磁気異方性の弱い等方的なハイゼンベルグスピングラスのモデル物質であり、最も典型的なスピングラス物質である。これら、クラスの異なるスピングラス物質に対し、上記の実験を行い、RSB の検証を試みた。

[9] Y. Tabata et al., J. Phys. Soc. Jpn. 79, 123704 (2010), Y. Tabata et al., Phys. Rev. B 96, 184406 (2017).

4. 研究成果

(1) 磁気応答測定による間接的な $P(q)$ の観測

(1a) 長時間極限における零磁場冷却(ZFC)磁化率及び磁場中冷却(FC)磁化率の差の観測

RKKY イジングスピングラス物質 $Dy(Ru_{0.5}Co_{0.5})_2Si_2$ に対して、ZFC 及び FC 後の磁化率 $\chi_{ZFC}(t, t_w)$, $\chi_{FC}(t, t_w)$ それぞれの長時間極限($t \rightarrow \infty, t_w \rightarrow \infty$)を巧妙に取り、平衡極限の ZFC/FC 磁化率を見積もり、両者が明確に異なっていることを実証した。この平衡極限の ZFC/FC 磁化率の差 $\Delta\chi_{FC-ZFC}$ は、安定なスピン配列の重なりでの最大値 $q_{max} = q_{\alpha\alpha}$ と平均値 $\bar{q} = \int qP(q)dq$ の差に温度をかけたもの $k_B T \Delta q = k_B T (q_{max} - \bar{q})$ であり、 $\Delta\chi_{FC-ZFC}$ が有限に残るということは、 $P(q)$ が非自明な形をしていることの極めて強い証拠である。

(1b) 磁気応答の磁場に対する非線形性の解析によるレプリコン指数の決定

レプリコンは、RSB 状態におけるレプリカ対称性を回復する南部ゴールドストーン励起である。このレプリコン励起の存在により、RSB スピングラスであれば、非平衡スピングラス相関は、 $[(S_i(t_w)S_j(t_w))^2]_r = r_{ij}^{-\theta} f[r_{ij}/\xi_{SG}(t_w)]$ とスピングラスドメイン内で距離の冪で減衰する。このスピングラス相関の減衰の指数をレプリコン指数と呼び、RSB 状態では有限値をとるが、RS 状態であればレプリコン励起が存在しないため、平衡極限で 0 となってしまう。従って、レプリコン指数を実験的に決定し、有限値として残るかどうかなを見ることで RSB が検証できる。本課題では、RKKY イジングスピングラス物質 $Dy(Ru_{0.5}Co_{0.5})_2Si_2$ に対して、磁気応答の磁場に対する非線形性を解析し、レプリコン指数を評価した。その結果、 $\theta \approx 1.5 - 2.0$ と見積もられ、明らかに有限値をとることが分かった。この結果は、RKKY イジングスピングラス物質におけるレプリコン励起の存在を示し、RSB を強く支持する結果となった。

(1c) 非平衡スピングラス相関長及びスピングラスドメインエネルギー障壁の成長則の決定

RKKY イジングスピングラス物質 $Dy(Ru_{0.5}Co_{0.5})_2Si_2$ に対して、磁気応答の磁場に対する非線形性を解析し、非平衡スピングラス相関長 $\xi_{SG}(t_w)$ を見積もり、その温度・待ち時間依存性を詳細に解析した。その結果、幅広い温度・待ち時間領域で成り立つスケーリング則があること、スピングラス相関長 ξ_{SG} と待ち時間 t_w を繋ぐ動的指数 z が温度に依存しないことを見出した。これはカノニカルスピングラスで観測された温度に逆比例する動的指数 $z \propto T_g/T$ とは大きく異なる結果である。また、これに関連してスピングラスドメインエネルギー障壁 ΔF_{SG} のスピングラス相関長 ξ_{SG} と温度依存性を調べ、同じサイズのスピングラスドメインであっても、 ΔF_{SG} は低温ほど小さいことを見出した。これは、 ΔF_{SG} にエントロピー項が大きく存在すること、スピングラスドメインには内部構造があり、低温で階層的に安定状態が分岐する RSB 描像と整合的であること、などが分かった。

(1d) 冷却中エイジングの解析による温度カオス効果の実証とカオス指数の決定

RKKY イジングスピングラス物質 $\text{Dy}(\text{Ru}_{0.5}\text{Co}_{0.5})_2\text{Si}_2$ 及びカノニカルスピングラス $\text{Au}(\text{Mn})$, $\text{Cu}(\text{Mn})$ に対して、冷却中に成長する非平衡スピングラス相関によるエイジング効果(冷却中エイジング)の観測を行い、いずれのスピングラス物質においても冷却中エイジングは冷却の全過程で累積的ではなく、温度変化に伴い新しくスピングラス相関が発達すること、即ち、温度カオスが生じていることが分かった。また、温度カオスが生じている場合に冷却中に成長する非平衡スピングラス相関長 ξ_{SG} は、冷却速度 R に対し $\xi_{SG} \propto R^{-1/(z+\zeta)}$ となることが示せるため、この冷却エイジング実験で温度カオスの強さを示すカオス指数を見積もることができる。実際に、RKKY イジングスピングラス物質、カノニカルスピングラスのカオス指数を見積もったところ、前者では弱いカオス効果 ($\zeta \approx 0$) を、後者では強いカオス効果 ($\zeta \approx 1$) を示す結果を得た。これは、RKKY イジングスピングラスとカノニカルスピングラスで温度カオスの起源が違うことを示しており、RKKY イジングスピングラスの弱い温度カオス効果は、平均場 RSB スピングラスの階層的な状態分岐に起因する非常に弱い温度カオス効果の表れであることが示唆される。

(1e) 非平衡揺動散逸比観測の試み

SQUID を用いた磁気ノイズ測定システムの開発を行い、スピングラスの非平衡状態における磁気応答関数 $\chi(t, t_w)$ と相関関数 $C(t, t_w)$ の間に成り立つ非平衡揺動散逸関係を検証し、揺動散逸比 $X(t, t_w) = -k_B T \partial \chi / \partial C$ を実験的に求めることで、間接的に重なり分布関数 $P(q) = dX/dq$ を得る実験を試みた。残念ながら、磁気ノイズ測定の誤差の低減が不十分であり、揺動散逸比を議論できる程の精度の良い結果が得られなかった。今後の課題である。

(2) スピン偏極 STM による直接的な $P(q)$ の観測の試み

分担者黒川が担当した本実験は、磁性探針として Cr 探針を採用し、液体ヘリウムを使った低温環境におけるスピン偏極 STM 実験のための装置開発を行った。温度制御は完全ではなく、液体ヘリウムの保持時間に問題はあるものの、低温で実際にスピン配列の実空間観測に成功した。本課題では、将来の $P(q)$ を直接評価のための予備実験として、RKKY イジングスピングラス物質 $\text{Dy}(\text{Ru}_{0.5}\text{Co}_{0.5})_2\text{Si}_2$ 及びその母物質である DyRu_2Si_2 の実空間スピン配列の観測を行った。 DyRu_2Si_2 では、既知の反強磁性(がおそらく表面のため変調を受けた)構造が観測され、 $\text{Dy}(\text{Ru}_{0.5}\text{Co}_{0.5})_2\text{Si}_2$ では、スピングラス状態のランダムなスピン配列を実際に観測した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Yoshimoto Subaru, Tabata Yoshikazu, Waki Takeshi, Nakamura Hiroyuki	4. 巻 92
2. 論文標題 Novel Slow Dynamics of Phase Transition in the Partially Ordered Frustrated Magnet DyRu2Si2	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 94705
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7566/JPSJ.92.094705	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計20件（うち招待講演 0件／うち国際学会 3件）

1. 発表者名 S. Yoshimoto, Y. Tabata, T. Waki, H. Nakamura
2. 発表標題 Extraordinarily slow critical dynamics in the frustrated magnet DyRu2Si2
3. 学会等名 15th Asia Pacific Physics Conference (APPC15) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 森永周輝, 田畑吉計, 和氣剛, 中村裕之
2. 発表標題 カノニカルスピングラスCuMnにおけるドメイン成長の温度及び冷却速度依存性の測定
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 前上義大, 田畑吉計, 中村裕之, 和氣剛
2. 発表標題 冷却中のスピングラスドメインサイズ成長
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 田畑吉計, 和氣剛, 中村裕之
2. 発表標題 長距離相互作用イジングスピングラスにおける零磁場冷却磁化率と磁場中冷却磁化率
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 田畑吉計, 和氣剛, 中村裕之
2. 発表標題 冷却中エイジングにおけるスピングラスドメイン成長則
3. 学会等名 日本物理学会2023年春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 吉本周玄, 田畑吉計, 和氣剛, 中村裕之
2. 発表標題 フラストレート磁性体DyRu ₂ Si ₂ の異常に遅い臨界ダイナミクス
3. 学会等名 日本物理学会2023年春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 曾田光亮, 黒川修, 田畑 吉計
2. 発表標題 RSB直接検証に向けたDy(Ru _{1-x} Cox) ₂ Si ₂ 系の4f電子スピンのSTMによる検出
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 S. Yoshimoto, Y. Tabata, T. Waki, H. Nakamura
2. 発表標題 Strong non-equilibrium effects and slow relaxation in the multi-metastable states of the frustrated magnet DyRu ₂ Si ₂
3. 学会等名 9th International Discussion Meeting on Relaxations in Complex Systems (9IDMRCS) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Y. Tabata, T. Waki, H. Nakamura
2. 発表標題 Nonequilibrium phenomena in a RKKY Ising spin glass
3. 学会等名 9th International Discussion Meeting on Relaxations in Complex Systems (9IDMRCS) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 吉本周玄, 田畑吉計, 和氣剛, 中村裕之
2. 発表標題 フラストレート磁性体DyRu ₂ Si ₂ における複数の準安定状態の出現
3. 学会等名 日本物理学会第78回年次大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 森永周輝, 田畑吉計, 和氣剛, 中村裕之
2. 発表標題 カノニカルスピングラスCuMnにおける冷却エイジング中のドメイン成長
3. 学会等名 日本物理学会第78回年次大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 田畑吉計, 和氣剛, 中村裕之
2. 発表標題 長距離相互作用イジングスピニングラスのレプリコン指数
3. 学会等名 日本物理学会第78回年次大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 吉本周玄, 田畑吉計, 和氣剛, 中村裕之
2. 発表標題 フラストレート磁性体DyRu ₂ Si ₂ の磁場誘起相における異常な緩和現象
3. 学会等名 日本物理学会2024年春季大会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 窪田尚通, 田畑吉計, 和氣剛, 中村裕之
2. 発表標題 カノニカルスピニングラスAuMnにおける非線形カイラル感受率測定
3. 学会等名 日本物理学会2024年春季大会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 前上義大, 田畑吉計, 中村裕之, 和氣剛
2. 発表標題 カノニカルスピニングラスにおけるドメイン成長の温度及び冷却速度依存性
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 中村海斗, 田畑吉計, Mohamed A. Kassem, 和氣剛, 中村裕之
2. 発表標題 ホール抵抗測定から見たCo ₃ Sn ₂ S ₂ の臨界現象
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 曾田光亮, 黒川修, 田畑吉計
2. 発表標題 RSB直接検証のためのDy(Ru _{1-x} Cox) ₂ Si ₂ 劈開面のSTM / STS観察
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 岸龍平, 田畑吉計, 和氣剛, 中村裕之
2. 発表標題 様々な条件下で育成したフラストレート磁性体ZnFe ₂ O ₄ 単結晶のスピングラス様磁性
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 田畑吉計, 和氣剛, 中村裕之
2. 発表標題 長距離相互作用イジングスピングラスにおけるスピングラスドメイン成長則
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 田畑吉計, 和氣剛, 中村裕之
2. 発表標題 長距離相互作用イジングスピングラスにおけるドメイン成長の冷却速度スケーリング
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	黒川 修 (Kurokawa Shu) (90303859)	京都大学・工学研究科・准教授 (14301)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------