

令和元年6月24日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2018

課題番号：15K05210

研究課題名(和文) 長距離相互作用イジングスピングラスにおけるレプリカ対称性の破れ

研究課題名(英文) Replica symmetry breaking in long-range interaction Ising 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) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：本課題では主に、長距離相互作用であるRKKY相互作用が働くイジングスピングラスについて、スピングラスの平均場理論の帰結である「レプリカ対称性の破れ(RSB)」が起こっているかどうかを検証する実験を行った。磁場中交流磁化率の動的スケーリング解析からは、有限磁場中における緩和時間の臨界発散が明確に観測され、磁場中でもスピングラス相が有限温度で存在することが分かった。また、種々の温度プロトコルによる非平衡磁化緩和測定から、スピングラス相における状態間のエネルギー障壁の階層構造を示唆する結果を得た。これらはRKKYイジングスピングラスにおけるRSBを強く支持する結果である。

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、正負ランダムに分布した相互作用をもつスピン系の基底状態であるスピングラスを記述する重要な概念であり、スピングラス状態の複雑性の基礎となる。スピングラスの平均場理論ではRSBが起こっていることは厳密に分かっているが、現実のスピングラス物質(やそれと等価な統計力学モデル)でのRSBについては結論は出ておらず、むしろRSBを否定する結果の方が有力視されている。本課題の実験結果は、ある種の長距離相互作用が働く系では3次元系でもRSBが起こることを強く示す結果であり、現実のスピングラス状態の本質を明らかにする重要な結果であると言える。

研究成果の概要(英文)：We have experimentally investigated on a nature of the spin glass state in long-range RKKY Ising spin glasses (SG). According to the mean-field theory of SG, the SG state is a ordered state where the replica-symmetry is broken. However, it is an open question whether the replica-symmetry is broken in "real spin glass materials". To answer this question, we have examined the replica-symmetry-breaking (RSB) in model magnets of the long-range RKKY Ising spin glass, (R,Y)Ru₂Si₂ (R = Dy, Tb, Gd) and Dy(Co,Ru)₂Si₂. In these compounds, the spin glass state survives even in the presence of magnetic field, which have been verified by our careful dynamic scaling analysis of the ac susceptibility in field. Furthermore, nonequilibrium magnetization response with various zero-field-cooling protocols exhibits characteristics which can be well understood by assuming hierarchical development of energy-barriers. These findings are good evidences of the RSB in the long-range RKKY Ising spin glasses.

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 臨界現象 非平衡緩和

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)」の概念であり、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、スピン系がもともと持っていたレプリカ対称性が破れた「秩序状態」とあるという理解である。RSB状態では、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が大きな特徴である(自由エネルギーの多谷構造)。また平均場スピングラスでは、各安定状態間の相関には超計量性があり、多谷構造が階層性を持っている(階層的な多谷構造、full-step-RSB)。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放射(ランダムレーザー)の光強度分布[2]など、ランダム系の複雑な平衡・非平衡状態で広く普遍的に現れることが理解されてきている。

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[3]。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 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 $SO(3)$ 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[4]。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もあり[5]、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] 例えば、P. E. Jönsson et al., Phys. Rev. B 71, 180412(R), M. Sasaki et al., Phys. Rev. Lett. 99, 137202 (2007). [4] R. P. Singh and A. P. Young, Phys. Rev. E 96, 012127 (2017). [5] 例えば、R. A. Banos et al., PNAS 109, 6452 (2012).

2. 研究の目的

そこで、本課題ではRKKY相互作用が働くイジングスピングラスにおいて、RSBが起こっているか実験的に検証する研究を行った。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。従ってこの物質群は、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だからである。

3. 研究の方法

RKKY相互作用イジングスピングラスのモデル物質として、希土類金属間化合物 RRu_2Si_2 ($R = Dy, Tb, Gd$)の希釈系 $(R,Y)Ru_2Si_2$ および混晶系 $Dy(Ru,Co)_2Si_2$ の単結晶を用いた実験を行った。それぞれの試料において、c軸方向の強い一軸異方性を確認しイジングスピン系となっていること、低温で零磁場冷却(ZFC)磁化と磁場中冷却(FC)磁化に差が現れるなどスピングラス挙動を示すこと、などを確認した(スピン凍結温度は希釈系で2-3 K, 混晶系で~10 K)。RSBの実験的検証は、(i) 磁場中スピングラス相転移の検証(RSBスピングラスでは磁場中相転移有り[6]、RSスピングラスでは無し[7]) (ii) スピングラス状態での非平衡緩和現象の観測、によって行った。(i)の磁場中における熱平衡スピングラス相転移の観測は、交流磁化率の動的スケールング解析によって行った。(ii)の非平衡緩和測定では、零磁場における等温・温度シフト・温度サイクルなど種々の零磁場エイジング後の磁化緩和を測定することで、スピングラス相における熱平衡化の過程および熱平衡状態についての知見を得た。これらの測定は全て京大低温物質科学研究センターのSQUID磁化測定装置MPMS(Quantum Design)を用いて行った。また、本課題の期間内では開発途中となってしまう結果は得られなかったが、RSB状態の特徴である無数の安定状態間の重なり分布関数の情報を得るための(iii) SQUIDを用いた磁気ノイズ測定システムの開発、も行った。

[6] J. R. L. de Almeida and D. J. Thouless, J. Phys. A 11, 983 (1978). [7] D. S. Fisher and D. A. Huse, Phys. Rev. B 38, 386 (1988).

4. 研究成果

(i)の磁場中スピングラス相転移に関しては、希釈系および混晶系のいずれにおいても有限の相転移温度を持つことが示された。これは RKKY イジングスピングラスでは RSB が起こっていることを強く示す結果である。また、磁場中相転移温度 $T_g(H)$ の磁場依存性の臨界指数 ϕ がスケール関係式 $\phi = \beta + \gamma$ を満たしていることが分かり、RSB は起こっているものの平均場の領域にはなく非平均場あるいはマージナルな領域にあることを示している。また RKKY イジングスピングラスの臨界指数は希釈系でも混晶系でもほぼ同じであり、単一の普遍性クラス(RI)を形成していること、短距離相互作用イジングスピングラス(SI)やハイゼンベルグスピングラス(H)とは異なる普遍性クラスにあること、なども分かった。これらの実験結果は、RKKY 相互作用の長距離性により系の有効次元が 3 より大きくなっていること、但しその有効次元は $d_u \equiv 6$ 以下であること、 d_u 以下でも RSB が起こりうること、を示している。さらに、これまでに知られていた 2 クラス SI, H と我々が見出したクラス RI の臨界指数を比べてみると、個々の臨界指数の値には大きな違いがあるが(例えば、 $\gamma \sim 1$ (RI), 4 (SI), 2(H))、 $\gamma/z\nu$ はどのクラスでも大凡 0.3 であり(異なるクラス間にも)普遍性が見られた。 $\gamma/z\nu$ は転移温度 T_g における動的スピングラス磁化率 $\chi_{SG}(t)$ の時間発展の指数($\chi_{SG}(t) \sim t^{-\gamma/z\nu}$)であり、この指数に普遍性があることについての意味があるのかについては、今後の(特に理論)研究を待つ必要がある。

(ii)の非平衡磁化緩和測定からは、まず等温エイジング(温度 T , エイジング時間 t_w)によるスピングラスドメイン(平衡状態のスピンドメインをもつ領域)サイズ $N_s(T, t_w)$ を磁化緩和の磁場依存性から測定し、広い温度範囲($0.518 < T/T_g < 0.965$)で成り立つ成長則 $\ln[N_s(T, t_w)/N_0] \propto (T/T_g)^{0.5} \ln(t_w/\tau_0)$ を見出した。この成長則は、理論的に予想され且つハイゼンベルグスピングラスで実際に観測されているドメイン成長則 $\ln[N_s(T, t_w)/N_0] \propto (T/T_g) \ln(t_w/\tau_0)$ とは異なり、その違いが何処から来ているのかを解明するのが次の課題である。ヒントは平衡状態への緩和が熱活性で進むと仮定したときのエネルギー障壁 $\Delta(T, N_s)$ が前者(RKKY イジングスピングラス)の成長則では温度依存($T^{0.5}$ 依存)するが、後者(理論、ハイゼンベルグスピングラス)では温度に依存しないことであり、前者では温度によって平衡状態が異なっていることを示唆している。また温度シフトエイジング磁化緩和測定(零磁場で最初 T_1 で t_{w1} 、次に T_2 で t_{w2} エイジング、その後 T_2 で磁場をかけ磁化緩和を測定)、温度サイクルエイジング磁化緩和測定(零磁場で最初 T_1 で t_{w1} 、次に T_2 で t_{w2} 、その次に T_1 に戻して t_{w3} エイジング、その後 T_1 で磁場をかけ磁化緩和を測定)などを行い、異なる温度におけるエイジング間、平衡状態間にもどのような関係があるかを調べた。実験の結果、ある温度 T_1 におけるエイジング(t_{w1})の効果(エネルギー障壁 $\Delta(T_1, t_{w1})$)はより低温($\leq T_1$)ではそのまま観測されるが、より高温($> T_1$)では大きく減じて観測された。また、複数の温度(T_1, T_2)におけるエイジング(t_{w1}, t_{w2})の効果は、より低温($\leq T_1, T_2$)では両方とも異なる大きさのエネルギー障壁 $\Delta_1(T_1, t_{w1}), \Delta_2(T_2, t_{w2})$ として累積的に観測された。これら種々の非平衡磁化緩和測定の結果は、自由エネルギーの多谷構造が階層性を持っており、その階層が低温ほどより細かく細分化される、というスピングラスの平均場理論で予想されている平衡状態への緩和として自然に理解でき、RKKY イジングスピングラスにおける RSB を支持するものである。

これら RKKY イジングスピングラスに関する研究以外にも、類縁物質である希釈反強磁性体 ($\text{Ho}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ru}_2\text{Si}_2$) における動的な反強磁性スピン相関の高分解能中性子非弾性散乱による精密測定を行い、常磁性相と Griffiths 相[8]との間の動的相転移の観測に成功した。また、通常のスピングラス物質とは異なり、顕なランダムネスが無くてもスピングラス様磁性を示すフラストレート磁性体 ZnFe_2O_4 のスピングラス転移を非線形磁化率測定や非平衡磁化緩和測定により詳細に調べ、スピングラス様磁性の出現が平衡相転移ではなく非平衡現象的に現れていることを見出した。

以上の研究成果の一部(RKKY イジングスピングラスの磁場中相転移、臨界現象)については 5. に示す通り既に論文発表済みであり、その他の結果については現在論文にまとめているところである。

[8] R. B. Griffiths, Phys. Rev. Lett. 23, 17 (1969).

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 1 件)

1. “Dynamic scaling analysis of the long-range RKKY Ising spin glass $\text{Dy}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ ”
Y. Tabata, T. Waki, H. Nakamura, Phys. Rev. B 96, 184406 (2017).

[学会発表] (計 10 件)

1. “希釈反強磁性体のグリフィス相におけるスピンドイナミクス”
田畑吉計, 松浦直人, 柴田薫, 桑原慶太郎, 和氣剛, 中村裕之
日本物理学会 2015 年秋季大会 16aPS-32, 2015 年 9 月 16 日, 関西大学

2. “希釈反強磁性体のグリフィス相におけるスピンドイナミクス”
田畑吉計, 松浦直人, 柴田薫, 桑原慶太郎, 和氣剛, 中村裕之
日本中性子科学会 RS-1, 2015 年 12 月 11 日, 和光市民文化センター サンアゼリア
3. “希釈反強磁性体における磁場誘起巨大磁気散逸現象”
田畑吉計, 和氣剛, 中村裕之
日本物理学会第 71 回年次大会 19aPS-38, 2016 年 3 月 19 日, 東北学院大学
4. “中性子非弾性散乱スペクトルの非パラメトリック解析”
福島孝治, 田畑吉計, 松浦直人, 柴田薫
日本物理学会 2016 年秋季大会 16aBC-5, 2016 年 9 月 16 日, 金沢大学
5. “Is replica symmetry broken in real spin glasses ?”
Y. Tabata (Invited)
International workshop on glasses and related nonequilibrium systems,
22 March 2017, Nakanoshima Center Osaka Univ.
6. “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”
田畑吉計, 中辻健太, 和氣剛, 中村裕之
日本物理学会 2017 年秋季大会 21aPS-38, 2017 年 9 月 21 日, 岩手大学
7. “フラストレート磁性体 $ZnFe_2O_4$ におけるスピングラス様磁性”
中辻健太, 高尾健太, 田畑吉計, 和氣剛, 中村裕之
日本物理学会第 73 回年次大会 22aPS-139, 2018 年 3 月 22 日, 東京理科大学
8. “フラストレート磁性体 $ZnFe_2O_4$ におけるスピングラス様磁性 2”
中辻健太, 高尾健太, 田畑吉計, 和氣剛, 中村裕之
日本物理学会 2018 年秋季大会 9aPS-38, 2018 年 9 月 9 日, 同志社大学
9. “長距離相互作用イジングスピングラス $Dy(Ru_{0.5}Co_{0.5})_2Si_2$ の動的臨界現象”
田畑吉計, 和氣剛, 中村裕之
日本物理学会 2018 年秋季大会 11aC210-3, 2018 年 9 月 11 日, 同志社大学
10. “希釈反強磁性体におけるグリフィス相への動的相転移”
田畑吉計, 松浦直人, 柴田薫, 桑原慶太郎, 和氣剛, 中村裕之
日本物理学会第 74 回年次大会 14aF304-16, 2019 年 3 月 14 日, 九州大学

〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年：
国内外の別：

○取得状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：

ローマ字氏名：

所属研究機関名：

部局名：

職名：

研究者番号（8桁）：

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：

ローマ字氏名：

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。