

学位論文題名

Spin freezing properties of an Ising spin glass $\text{Fe}_{0.05}\text{TiS}_2$
in zero and non-zero magnetic fields

(イジング・スピングラス $\text{Fe}_{0.05}\text{TiS}_2$ のゼロ磁場
及び磁場中でのスピン凍結の性質)

学位論文内容の要旨

スピングラス物質とは転移温度 T_f より低温でスピンのランダムな方向を向いて運動を止めている様に見える磁性体を言う。その様な性質を持つ原因はスピン間相互作用もしくはスピンの空間配置のランダム性とスピン間相互作用のフラストレーションの二つの要素によるとされている。スピングラスではゼロ磁場中で実験的に T_f 近傍での磁化率の鋭いピーク、非線形磁化率の発散といった相転移を示唆する結果が観測されているが、一方比熱には T_f 近傍で何の異常もないといった相転移を支持しない結果も観測されている。熱力学的な秩序相としてスピングラス状態のようなランダムな相は今まで知られておらず、そのためスピングラス転移が熱力学的な相転移であるか否かが、スピングラス研究に於いては重要な研究課題である。

スピングラスに対しての物理的描像を得るためにいくつかの理論的模型が提案されている。イジング・スピンに対してスピン間相互作用を無限レンジにとった、シェリントン・カークパトリック(SK)模型と呼ばれる模型がレプリカ法と平均場近似を用いて解かれている。その解がスピングラスの平均場描像を与えるとされており、ゼロ磁場及び有限磁場中共にスピングラス転移は相転移である事を予言する。有限磁場中での転移温度はその磁場の大きさに依存し、磁場-温度相図で常磁性相とスピングラス相の境界線をAT線と呼ぶ。一方液滴模型というスピン間相互作用が短距離であるイジング・スピンに対しての不均一模型は有限磁場中での相転移の存在を否定する。短距離スピン間相互作用を伴ったイジング・スピングラス模型に対してのコンピュータ・シミュレーションはゼロ磁場での相転移の存在を示唆するが、有限磁場中ではその存在を否定する。本研究はスピングラス転移がゼロ磁場及び有限磁場中で相転移である

か否かをスピン緩和現象に着目して実験的に調べる事を目的としたものである。ほとんどの理論的模型及びシミュレーションはイジング・スピングラスに対して行われているので試料としてイジング・スピングラスである事が分かっている $\text{Fe}_{0.05}\text{TiS}_2$ を採用した。有限磁場中では相転移の存在を示唆するSK模型と否定する液滴模型及びシミュレーションがあるが、この矛盾がスピン間相互作用の距離の違いによるのかどうかは明白でない。 $\text{Fe}_{0.05}\text{TiS}_2$ のスピン間相互作用はRKKY相互作用で伝導電子を媒介としたかなり長距離に及ぶものである。緩和現象を調べる方法として交流磁化率測定と熱残留磁化測定を行った。スピングラスのスピン緩和時間は T_g のかなり上の温度から長くなり、 T_g 以下の温度では非常に長い。

交流磁化率測定はその測定時間が短いため T_g より上の温度での緩和現象を調べるために有効な手段である。これまでの実験例からスピングラスの緩和時間は広い分布を持つが、 $\text{Fe}_{0.05}\text{TiS}_2$ もコール・コール図から広い分布を持つ事が分かった。そのためまずゼロ磁場中で2~2000 Hzで磁化率の実部と虚部を精度良く測定し緩和時間に対して2つの分布関数を導入して解析を行い分布関数の型を評価した。その結果明瞭な上端を持つ矩形分布関数が交流磁化率のデータと同時に T_g よりわずかに上の温度での熱残留磁化のデータをも説明する事が分かった。従って以下のスピン凍結の性質を調べるための交流磁化率測定のデータに対しては矩形分布関数を仮定して解析を行った。測定は周波数0.3~3000 Hzでゼロ磁場中及び有限磁場中(5000、7500 Oe)で行い、磁化率の実部を解析に使用した。その結果矩形分布は有限磁場中のデータをも良く記述する事が分かった。一般に磁性体が相転移を起こす場合、スピン緩和時間は冪乗則に従って発散する事が理論的及び実験的に知られている。 $\text{Fe}_{0.05}\text{TiS}_2$ に於いては平均緩和時間の温度変化は冪乗則に従うような発散的振る舞いをすべての測定磁場に対して見せる。その時の冪乗則中の転移温度の磁場依存はSK模型から予言されたAT線でほぼ記述される。(このAT線に良く似た振る舞いをする線が $\text{Fe}_{0.05}\text{TiS}_2$ に於いても磁化測定から得られた。)しかし冪乗則中の臨界指数の値は多くのスピングラスで観測されている値よりもゼロ磁場では僅かに大きな値をとり有限磁場中でもかなり大きな値をとる。従ってこの結果は磁場は相転移温度と臨界指数の値を変える効果がある事を予期させる。

スピングラスの平均場描像に依ると、スピングラス相ではその自由エネルギー構造は位相空間で多谷階層構造をとるとされている。多谷構造とは T_g より低温のある温度

では多くの準安定状態が存在する構造である。階層構造とはその一つ一つの状態が更に低温では多くの状態に分岐している構造をいう。多谷階層構造の有無を実験的に調べるために熱残留磁化の測定をした。熱残留磁化とは磁場中で試料を高温から測定温度迄冷却し磁場をゼロにした後で残っている磁化で、時間の経過と共にゼロに向かって緩和する。本研究では冷却磁場として低磁場(20 Oe)と高磁場(7500 Oe)を用い、測定温度は各磁場に対して T_c より低温である。20 Oeは非常に小さいのでゼロ磁場の振る舞いを反映すると考えられる。スピングラスでは熱残留磁化の緩和が試料が測定温度になってから磁場をゼロにする迄の時間(待ち時間)に依存する事が知られている。 $\text{Fe}_{0.05}\text{TiS}_2$ に於いても低磁場と高磁場の両方で待ち時間を変えた測定を行い、両方にこの待ち時間効果が観測された。この結果は多谷構造で定性的に記述できる。次に測定温度より低温でも待ち時間を設けた測定をし、上に記述した測定温度でのみ待ち時間を設けた時の結果と比較した。低磁場では低温での待ち時間効果は殆ど観測されず、高磁場では測定温度での待ち時間効果は小さいが低温での待ち時間効果が観測された。低磁場での結果は多谷階層構造で記述できる。高磁場での結果は多谷階層構造で記述しようとする場合状態間のエネルギー障壁高がゼロ磁場の時に較べかなり低くなっている事を示唆する。

以上の事から本研究の結果はすべて平均場の予測を用いての記述が可能である事が分かった。従って $\text{Fe}_{0.05}\text{TiS}_2$ のスピングラス転移はゼロ磁場及び有限磁場中で相転移である事が予期される。しかし有限磁場の結果はゼロ磁場の結果に較べ平均場描像と明白な一致を見せる訳ではないので、有限磁場中でのスピングラスの性質に対しての理論的展開が待たれる。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 宮 台 朝 直
副 査 教 授 和 田 宏
副 査 助 教 授 榑 原 俊 郎
副 査 助 教 授 田 附 雄 一

学 位 論 文 題 名

Spin freezing properties of an Ising spin glass $\text{Fe}_{0.85}\text{TiS}_2$

in zero and non-zero magnetic fields

(イジング・スピングラス $\text{Fe}_{0.85}\text{TiS}_2$ のゼロ磁場及び磁場中でのスピン凍結の性質)

スピングラスとは、スピン間相互作用またはスピンの空間配置のランダム性とスピン間相互作用のフラストレーションの2つの原因により、転移温度 T_0 以下でスピンがランダムな方向を向いて凍結している様な状態、またはそのようになる磁性体を言う。スピングラスでは、(1)ゼロ磁場中で実験的に T_0 近傍で磁化率に鋭いピークがある、(2)非線形磁化率が発散する、(3)スピン緩和時間が冪乗則で発散する、と言う相転移を示唆する結果が観測されているが、一方比熱には T_0 近傍で何の異常もないと言う相転移を支持しない結果も観測されている。そのためスピングラス転移が熱力学的な相転移であるか否かが、スピングラス研究においては重要な研究課題である。スピングラスに対しての物理的描像を得るためにいくつかの理論的模型が提案されている。イジング・スピンに対してスピン間相互作用を無限レンジにとった、シェリントン・カークパトリック(SK)模型がレプリカ法を用いて解かれていて、ゼロ磁場および有限磁場中ともにスピングラス転移は相転移である事を予言する。転移温度の磁場依存性を表す曲線をAT線と呼ぶ。一方、液滴模型と言うスピン間相互作用が短距離であるイジング・スピンに対しての不均一模型は有限磁場中での相転移の存在を否定する。ゼロ磁場でのスピングラス転移が相転移である事は、理論的・実験的に確立されている。

申請者の研究はスピングラス転移が有限磁場中で相転移であるか否かの問題をスピン緩和現象に着目して実験的に調べる事を目的としたものである。申請者は試料としてイジング・スピングラス $\text{Fe}_{0.85}\text{TiS}_2$ を採用した。緩和現象を調べる方法として、申請者は交流磁化率測定と熱残留磁

化測定を採用した。

交流磁化率測定はその測定時間が短いため T_g より上の温度での緩和現象を調べるために有効な手段である。これまでの実験例からスピングラスの緩和時間は広い分布を持つが、 $\text{Fe}_{0.85}\text{TiS}_2$ もコール・コール図から広い分布を持つ事が分かった。測定は周波数0.3~3000 Hzでゼロ磁場および有限磁場中(5000 Oe, 7500 Oe)で行われ、解析の結果2つの重要な結果が得られた。第一に、明瞭な上端を持つ矩形緩和時間分布関数がゼロ磁場および有限磁場中でのデータを良く記述する事が分かった。第二に、一般に磁性体が相転移を起こす場合スピン緩和時間は冪乗則に従って発散する事が理論的および実験的に知られているが、 $\text{Fe}_{0.85}\text{TiS}_2$ においては平均緩和時間の温度変化は冪乗則に従うような発散的振る舞いをすべての測定磁場に対して示すこと、およびパラメタが磁場依存することが分かった。冪乗則のパラメタである転移温度の磁場依存性はSK模型から予言されたAT線ではほぼ記述される。

スピングラスの平均場描像によると、スピングラス相ではその自由エネルギー構造は位相空間で多谷階層構造をとるとされている。多谷構造とは多くの準安定状態が存在する構造である。階層構造とは T_g 以下のある温度での一つの状態が更に低温ではいくつかの状態に分歧して行く構造をいう。申請者は多谷階層構造の有無を実験的に調べるために熱残留磁化の測定を行った。熱残留磁化とは試料を T_g 以上から T_g 以下まで磁場中で冷却した後磁場をゼロにした後での磁化で、ゼロに向かって緩和する。冷却磁場として低磁場(20 Oe)と高磁場(7500 Oe)が用いられた。20 Oeは非常に小さいのでゼロ磁場での振る舞いを反映すると近似できる。スピングラスでは熱残留磁化の緩和が、試料が測定温度になってから磁場をゼロにするまでの時間(待時間)に依存する事が知られている。申請者は $\text{Fe}_{0.85}\text{TiS}_2$ においても低磁場と高磁場の両方で待時間を変えた測定を行い、両方にこの待時間効果が観測された。この結果は多谷構造で解釈できる。次に測定温度より低温でも待時間を設定した測定をした。低磁場では低温での待時間効果はほとんど観測されなかった。高磁場では小さいながら待時間効果が観測された。低磁場での結果は多谷階層構造で解釈できる。高磁場での結果は、状態間のエネルギー障壁高がゼロ磁場の時に較べかなり低くなっていると仮定すれば多谷階層構造で解釈できる。

以上の事から、実験結果はすべて平均場近似での解釈が可能である事が分かったので、申請者は $\text{Fe}_{0.85}\text{TiS}_2$ のスピングラス転移はゼロ磁場と同様、有限磁場中でも相転移であると結論した。したがって、その成果は高く評価される。参考論文5篇はいずれも本研究に関連するものであり、権威ある内外の雑誌に掲載された。

よって、審査員一同は申請者が博士(理学)の学位を受ける資格があるものと認めた。