

学位被授与者氏名	北崎 保 (Tamotsu Kitazaki)
学位の名称	博士 (工学)
学位番号	博 (一) 第 2 4 号
学位授与年月日	平成 2 3 年 3 月 2 0 日
論文題目	モンテカルロシミュレーションによるフラストレートした磁性体と不規則磁性体の磁気相転移に関する研究
論文題目 (英訳または和訳)	Study of magnetic phase transition in frustrated magnet and random magnet by Monte Carlo simulation
論文審査委員	論文審査委員会 委員主査 : 福岡工業大学大学院物質生産システム工学専攻教授 加藤 友彦 同審査委員: 福岡工業大学大学院物質生産システム工学専攻教授 久保 英範 同審査委員: 福岡工業大学大学院物質生産システム工学専攻教授 北川 興 同審査委員: 福岡工業大学大学院知能情報システム工学専攻教授 内田 一徳
論文審査機関	福岡工業大学大学院工学研究科
論文内容の要旨 (和文)	<p>不規則磁性体やパイロクロア磁性体のように、スピン間の相互作用が複雑な磁性体は、統計力学の観点から興味深い物質であり、多くの理論的・実験的研究が行われてきた。今回の研究では、解析的な理論では結論を得るのが困難な、これらの複雑な性質を持つ磁性体について、適当なモデルを設定し、様々なモンテカルロ法を用いて、計算機シミュレーションを行い、特性を調べる。</p> <p>幾何学的フラストレーションであるスピンアイス状態を示す四面体格子の物質として、希土類化合物パイロクロア($\text{Ho}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$, $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$)がよく知られている。遷移金属化合物 $\text{Co}_2\text{Cl}(\text{OH})_3$ はこれらと同種の構造を持っているが、一軸方向に歪んでいる特徴を持っている。この物質の低温の磁気構造は、強磁性とランダムスピンの共存であることが実験的に確かめられている。しかしながら、このような特異な磁気構造が実現する相互作用の機構は明らかになっていない。そこで、この物質を実験結果から示唆される異方的イジングモデルによって表現し、適当な交換相互作用を設定し、モンテカルロシミュレーション(マルチカノニカル法, 熱浴法)で計算する。それにより基底状態の磁気構造を調べ、上記の磁気構造がどのような条件で成立するかを検討する。</p> <p>磁性原子が不規則に配列する磁気混晶の相転移は、単原子結晶や規則的配列の化合物の場合とは異なり、秩序変数が明確に消失せず、緩やかな転移を示すことが多い。この原因は、大きな磁気クラスターが転移温度より高温であっても存在し、この磁気クラスターの緩和時間よりも観測時間が短い場合には、平均化されずに有限の値として観測されるためと考えられる。即ち、緩やかな相転移は観測時間が有限であるための非平衡現象であると考えられる。従って相転移の振る舞いは観測時間に依存すると考えられる。そこで、不規則磁性体の緩和過程と、秩序変数の観測時間による変化を、シミュレーションにより計算する。モデルとして、二次元正方格子に磁性原子と非磁性原子がランダムに配置された磁気混晶の系をイジングモデルで設定し、実時間に対応する動的モンテカルロ法で計算を行う。計算結果を準二次元の単純希釈磁性体である $\text{Mn}_x\text{Cd}_{1-x}(\text{HCOO})_2 \cdot 2(\text{NH}_2)_2\text{CO}$ に対する NMR の実験と比較する。</p> <p>第 1 章では、計算機シミュレーションを行うために利用した理論や手法の概要と、対象とする系と関連の深い事象についての説明を述べる。</p> <p>第 2 章では、一軸方向に歪んだパイロクロア型磁性体である $\text{Co}_2\text{Cl}(\text{OH})_3$ を対象にシミュレーションを行う。最近接格子間相互作用のみを考えた場合では、基底状態は高度に縮退されており、圧倒的多数の状態はランダムスピンであった。しかし実験結果と符合する、一層おきの強磁性的状態も少数存在していた。このことから、第二近接格子間相互作用により、強磁性とランダムスピンの共存する磁気構造が実現し得ると考え、実験によって明らかにされた磁気構造を再現した。</p> <p>第 3 章では、不規則磁性体の相転移の様相をシミュレーションで調べた。まず緩和過程を解析し、通常の指数緩和と異なる引き延ばされた指数緩和 $\exp[-(t/\tau)^\beta]$ に従うことを示した。更に全ての濃度において、高温では通常の指数緩和になることを示した。次に秩序変数の観測時間による変化を計算し、各スピンの時間 t 内の平均 $\langle S_i \rangle_t$ を各温度において、NMR の実験条件に対応すると考えられる色々な観測時間について計算した。これを度数分布に表し、これから 2 乗平均の平方根 $\left(\frac{1}{N} \sum_i \langle S_i \rangle_t^2 \right)^{1/2} \equiv \bar{S}_t$ を求めた。この量が NMR のスピンエコーで測定されるスペクトルの半値幅に対応するものであり、これを“準オーダーパラメーター”と定義し、</p>

	<p>$\text{Mn}_x\text{Cd}_{1-x}(\text{HCOO})_2 \cdot 2(\text{NH}_2)_2\text{CO}$ に対する NMR の実験と比較した。計算結果は実験結果と良い一致を示した。</p> <p>第4章では、本研究で得られた結論をまとめた。</p>
<p>論文内容の要旨 (英文)</p>	<p>Magnets with complicated interactions between spins like random magnet and pyrochlore magnet are interesting materials from a point of view in statistical mechanics. So, many theoretical and experimental researches have been performed. In this study, the characteristics which are difficult to obtain a conclusion by analytic theories are investigated by computer simulations in various Monte Carlo methods with setting suitable models.</p> <p>Rare-earth pyrochlore compounds (e.g., $\text{Ho}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ and $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$) are well known as materials which have a tetrahedral lattice and exhibit the spin ice state, a kind of the geometrical frustration. The transition metal compound $\text{Co}_2\text{Cl}(\text{OH})_3$ has the same tetrahedral structure, but is distorted in one direction. It is concluded experimentally that the magnetic structure of $\text{Co}_2\text{Cl}(\text{OH})_3$ at low temperatures is coexistence of the ferromagnetism and the random spin. However, the mechanism of magnetic interactions by which this peculiar magnetic structure is realized remained unclear. Then simulations are performed in the heat bath and multicanonical Monte Carlo simulation by assuming an anisotropic Ising model suggested by experimental findings and setting a suitable interaction. Thereby, the condition of the interactions by which the observed magnetic structure is realized is examined.</p> <p>Random magnets generally exhibit gradual phase transitions. The cause of this phenomenon is considered due to the fact that large magnetic clusters yield magnetic moments even at temperatures higher than the critical temperature. Such magnetic moments should be averaged out if the observation time is sufficiently long. It is considered that the gradual phase transitions are non-equilibrium phenomena in which the relaxation times of large magnetic clusters become longer than the finite observation time at the transition region. Then, the behavior of the phase transition should depend on the observation time. So, the change of the order parameter in the observation time is calculated by Dynamic Monte Carlo simulation. The employed random system is a simple dilution of magnetic atoms with Ising spins in a square lattice. The calculated results are compared with $\text{Mn}_x\text{Cd}_{1-x}(\text{HCOO})_2 \cdot 2(\text{NH}_2)_2\text{CO}$ in NMR spin-echo experiments.</p> <p>Chapter 1 describes the summary of theories and techniques to be used to perform computer simulation and explanation of deeply related phenomena to this study.</p> <p>Chapter 2 describes the investigation of $\text{Co}_2\text{Cl}(\text{OH})_3$ by simulation. In a nearest neighbor model, the ground states are highly degenerate. Almost all of the states are in spin glass states, but a few of the states are ferromagnetic. The latter states should be stabilized if weak ferromagnetic interactions exist between second nearest neighbor spins. Thereby, the simulation reproduces the states reported by experiments.</p> <p>Chapter 3 describes the investigation of phase transition in random magnet by simulation. First the relaxation process is analyzed. It is shown that the relaxation process obeys the stretched exponential decay $\exp[(-t/\tau)^\beta]$ unlike normal exponential relaxation. Furthermore, it is shown that the relaxation becomes to the normal relaxation at the high temperature in every density. Secondly the change of order parameter in the observation time is investigated. In order to examine the effect of the finiteness of the observation time, the average of each spin (say S_i) during time t, $\langle S_i \rangle_t$, for various temperatures is calculated. The “quasi-order parameter” for observation time t is reasonably defined by the square root of the second-power average of $\langle S_i \rangle_t$ as</p> $\left(\frac{1}{N} \sum_i \langle S_i \rangle_t^2 \right)^{1/2} \equiv \bar{S}_t .$ <p>The calculated result of \bar{S}_t is compared with $\text{Mn}_x\text{Cd}_{1-x}(\text{HCOO})_2 \cdot 2(\text{NH}_2)_2\text{CO}$ in NMR spin-echo experiments. Calculation</p>

	<p>results are in good agreements with experimental results. Chapter 4 describes the summary and the conclusions of this study.</p>
論文審査結果	<p>この論文は、化合物磁性の磁気相転移に関する未解決な諸問題の中で、解析的な理論による解決が困難な問題を2つ取り上げ、それぞれに合理的なモデルを設定し、目的に応じたモンテカルロシミュレーションの手法を利用して、現象の特徴を再現し、相互作用の機構、低温での磁気状態、磁気相転移の本質を明らかにすることを試みたものである。</p> <p>第1の問題は、この20年来、化合物磁性の分野で、多くの実験的、理論的研究がなされたパイロクロア磁性体に関する研究である。当初は磁性原子が希土類金属元素である物質が研究され、相互作用が強磁性的である場合に、幾何学的フラストレーション効果によりいわゆるスピナイス状態を示すことが明らかにされた。その後、佐賀大の鄭氏のグループにより磁性原子が3d遷移金属の場合の実験が実施され、多くの新しい結果が明らかにされた。特に、$\text{Co}_2(\text{OH})_3\text{Cl}$ の場合は結晶が一軸方向に歪み、ある層では強磁性、次の層ではランダムスピンという従来にない特異な磁気構造が特定された。この構造を通常の平均場近似的な理論で解釈することは困難で、その理論的解明は一つの課題とされてきた。これに対して、本論文は実験事実と符合するモデルを仮定したモンテカルロシミュレーションにより、強磁性的な第1近接相互作用に加えて、弱い強磁性的な第2近接相互作用が存在すればこの磁気構造が実現することを明らかにした。合わせて、自発磁化ならびにスピングラス秩序の温度変化などを計算し、実験結果の特徴を良く再現することを示した。この結果は懸案の問題について明確な解決を与えたものとして評価される。</p> <p>第2の問題は、一般に磁気混晶の相転移が単結晶の相転移と異なって緩やかな転移を示す現象に関する研究である。この現象の本質の解明は長年の難問題とされてきたが、本論文では、相転移領域では磁気クラスターが大きく成長するため緩和時間が観測時間を越えるほどに長時間となり、観測は非平衡状態に対応しているとの観点に立って、相転移の観測時間依存性を検討した。単純な2次元希釈系イジングモデルを設定し、動的モンテカルロシミュレーションによって、観測時間に依存する磁化（秩序変数）の温度変化を計算した。これに対応する系統的な実験はほとんどなされていないのが実状であるが、数年前に本学の久保グループがNMRスピネコーの実験で準2次元単純希釈磁性体 $\text{Mn}_x\text{Cd}_{1-x}(\text{HCOO})_2 \cdot 2(\text{NH}_2)_2\text{CO}$ について、観測時間を特定して準秩序変数の温度変化を観測した。さらに、観測時間を変えることにより、相転移の様相に明確な差があることを明らかにした。本論文の計算結果はこれらの実験結果と半定量的に一致しており、理論のモデルと考え方の正当性を示すことができた。また、この研究で用いた計算手法は、化合物磁性の非平衡現象一般に広く適用可能である点も評価される。</p> <p>以上のことから、本論文は博士（工学）の学位論文に値すると認める。</p> <p>本論文に関し、審査委員から特に1の問題に関連して、特異な磁気構造が実現する機構の直感的説明について、またフラストレーション、カゴメ格子などの意味などについて質問があったが、いずれも著者により適切な回答がなされた。学位論文公聴会においては、論文内容に関連するいくつかの質問があったが、おおむね適切な回答がなされた。また公聴会後の最終試験においては、学位論文に関連する分野の学識を有し、今後研究を進めていくための研究能力を備えていることを認定した。</p> <p>以上の結果から、学位審査委員会はこの論文が博士（工学）の学位に適格であると判定する。</p>
主な研究業績	<p>参考論文 9編1冊</p> <p>(査読付英語論文)</p> <p>1. “Simulation of non-equilibrium phase transition in a random magnetic system”, Journal of Physics: Conference Series, Volume 200, 032035, pp.1-4 (2010) Authors: Tamotsu Kitazaki and Tomohiko Kato</p> <p>(国際学会発表)</p> <p>2. “Simulation on Non-equilibrium Phase Transition in Random Magnetic System”, International Conference on Magnetism (ICM2009), July 26-31, 2009, Karlsruhe, Germany,</p>

(Poster) Authors: Tamotsu Kitazaki and Tomohiko Kato

(学術雑誌)

3. 「不規則磁性体の緩和過程と非平衡相転移に関する動的モンテカルロシミュレーション」, 福岡工業大学研究論集, 40 巻, 1 号, pp.1-8 (2007)著者: 北崎保, 加藤友彦, 久保英範
4. 「一軸方向に歪んだパイロクロア型磁性体の基底状態 -第二近接相互作用の効果-」, 福岡工業大学研究論集, 43 巻, 1 号, pp.5-9 (2010)著者: 北崎保, 古賀陽介, 加藤友彦

(国内発表)

5. 「磁気混晶の緩和過程および秩序変数の観測時間による変化」, 第112回日本物理学会九州支部例会, 鹿児島大学, 2006年著者: 北崎保, 加藤友彦
6. 「磁気混晶の相転移の観測時間依存性」, 第62回日本物理学会年次大会, 北海道大学, 2007年著者: 加藤友彦, 北崎保, 久保英範
7. 「磁気混晶の相転移の観測時間依存性」, 第113回日本物理学会九州支部例会, 大分大学, 2007年著者: 北崎保, 加藤友彦, 久保英範
8. 「一軸方向に歪んだパイロクロア磁性体の基底状態」, 第114回日本物理学会九州支部例会, 福岡工業大学, 2008年著者: 加藤友彦, 北崎保
9. 「一軸方向に歪んだパイロクロア磁性体の基底状態II -第2近接相互作用の効果-」, 第115回日本物理学会九州支部例会, 宮崎大学, 2009年著者: 北崎保, 加藤友彦