

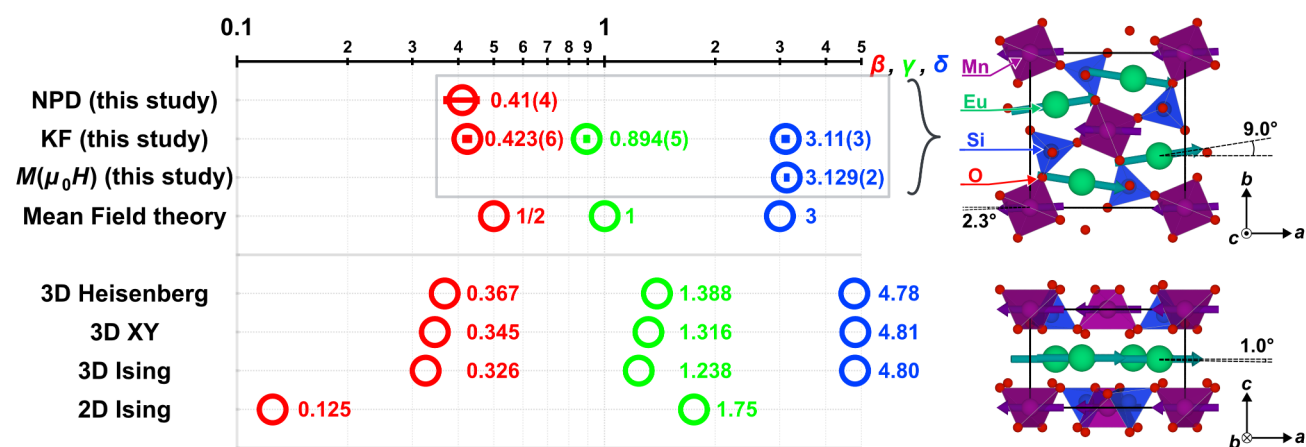
遠くまで届く磁気の力が相転移を支配 —絶縁性フェリ磁性体で「平均場臨界性」を初めて実証—

概要

京都大学複合原子力科学研究所の南部雄亮 特定教授らの国際共同研究グループは、メリライト型酸化物 $\text{Eu}_2\text{MnSi}_2\text{O}_7$ において、絶縁性フェリ磁性体^{*1}では初めて、長距離の磁気双極子-双極子相互作用^{*2}が磁気相転移付近の温度変化を決定し、「平均場理論^{*3}」に近い臨界現象^{*4}を生み出すことを明らかにしました。

約 10.6 K (約マイナス 262.6 °C) の転移温度付近で磁化測定から求めた臨界指数^{*4} は $\beta = 0.423(6)$ 、 $\gamma = 0.894(5)$ 、 $\delta = 3.129(2)$ で、平均場理論の値 ($\beta = 1/2$ 、 $\gamma = 1$ 、 $\delta = 3$) に近く、中性子粉末回折実験によって得られた $\beta = 0.41(4)$ とも一致しました。さらに、 Eu^{2+} イオンと Mn^{2+} イオンの磁気モーメントが互いに反対向きに並びながら完全には打ち消し合わない、わずかに傾いたフェリ磁性的磁気構造を形成していることを明らかにしました。

本研究は、短距離の交換相互作用^{*5}がフェリ磁性秩序そのものを安定化する一方、弱くてもより遠くまで届く双極子相互作用が臨界点近傍の普遍的な振る舞いを決めるという役割分担を示しています。これまで主に強磁性体で知られていた双極子相互作用駆動の平均場臨界性をフェリ磁性体へ拡張し、今後、反強磁性体を含む磁気相転移の普遍性を検証するための新たな基盤となることが期待されます。本研究成果は 2026 年 8 月 12 日に米国物理学会の国際学術誌 *Physical Review Letters* にオンライン掲載されました。



フェリ磁性相転移の性質を表す臨界指数 β (赤)、 γ (緑)、 δ (青) を、中性子粉末回折 (NPD)、Kouvel-Fisher (KF) 解析、および磁化の磁場依存性 $M(\mu_0 H)$ から求め、平均場理論と代表的な理論モデルの値と比較した。実験値は平均場理論の予測に近く、長距離の磁気双極子相互作用が相転移を支配していることを示す。右に中性子回折で決定した磁気構造を、 c 軸方向 (上) および b 軸方向 (下) から眺めた図を示す。矢印と角度は、 Eu と Mn の磁気モーメントがほぼ反平行に配列し、わずかに傾いていることを示す。(作成：南部雄亮)

1. 背景

水の沸騰や磁石の磁気秩序の出現など、物質の状態が集団的に変わる現象を相転移と呼びます。相転移の直前では、物質ごとの細かな違いを超えて共通の法則が現れます。この「普遍性」は、秩序の立ち上がり方や物理量ごとの応答の発散を表す臨界指数 β 、 γ 、 δ などによって分類されます。

平均場理論は、一つ一つの磁気モーメントが周囲の多数のモーメントから受ける効果を平均化して扱う理論です。相互作用が近くの原子だけに及ぶ場合には熱揺らぎの影響が強く、実際の臨界指数は平均場値からずれることが一般的です。一方、遠くの磁気モーメントまで結びつける長距離相互作用が効くと、平均場型の臨界性が現れることがあります。

金属磁性体では伝導電子が媒介する RKKY 相互作用^{*6}が長距離結合を担いますが、絶縁体には伝導電子がないため、一般的な長距離結合の候補は磁気双極子-双極子相互作用です。これまで絶縁性強磁性体では双極子相互作用による平均場臨界性が確立されていましたが、磁気モーメントの異なる副格子が反対向きに並ぶフェリ磁性体では未解明でした。

$\text{Eu}_2\text{MnSi}_2\text{O}_7$ は Eu^{2+} (スピン $S = 7/2$) と Mn^{2+} ($S = 5/2$) が大きな、ほぼスピンだけの磁気モーメントをもつ絶縁性フェリ磁性体です。両者は主に反対向きに並びますが大きさが異なるため、全体として磁化が残ります。また、結晶に反転対称性がないため、Dzyaloshinskii–Moriya (DM) 相互作用^{*7}による磁気モーメントのわずかな傾きが期待されます。しかし Eu は中性子を非常に強く吸収するため、これまで微視的な磁気構造の決定が困難でした。

2. 研究手法・成果

研究グループは固相反応により多結晶 $\text{Eu}_2\text{MnSi}_2\text{O}_7$ を合成し、2 ～ 300 K (約マイナス 271.2 ～ プラス 26.9 °C)、最大 9 T で磁化を測定しました。また、中性子粉末回折実験は ANSTO の高分解能回折装置 Echidna および高強度回折装置 Wombat で行い、Eu による吸収の影響を抑えるため試料を二重壁の円筒セルに充填しました。その結果、以下の主要な知見を得ました。

1. 三つの独立な解析で平均場に近い臨界指数を確認

Kouvel-Fisher 解析、修正 Arrott プロット、スケーリング解析を組み合わせ、磁気転移温度 $T_c = 10.62(3)$ K、 $\beta = 0.423(6)$ 、 $\gamma = 0.894(5)$ を得ました。臨界等温線からは $\delta = 3.129(2)$ 、 β と γ から導く Widom 関係からは $\delta = 3.11(3)$ となり、互いに良く一致しました。これらは平均場理論の $\beta = 0.5$ 、 $\gamma = 1$ 、 $\delta = 3$ に近い値です。

2. 中性子回折でも同じ臨界挙動を独立に検証

磁気反射の温度依存性を解析すると $T_c = 10.7(1)$ K、 $\beta = 0.41(4)$ となり、磁化測定の結果とよく一致しました。異なる測定手法から同じ結論が得られたことで、平均場型臨界性の信頼性が確認されました。

3. Eu と Mn が同時に秩序化する、傾いたフェリ磁性体の磁気構造を決定

3 K の回折パターンは磁気空間群 $P2_12'_12'$ で最も良く説明されました。 Eu^{2+} と Mn^{2+} は約 10.6 K で同時に秩序化し、秩序モーメントはそれぞれ $7.3(2) \mu_B$ と $5.0(2) \mu_B$ でした。両者は主に結晶の ab 面内で反対向きに並び、Mn は a 軸から約 $\pm 2.3^\circ$ 、Eu は面内で約 $\pm 9.0^\circ$ 傾き、Eu には小さな面外成分も示唆されました。この傾きは反転対称性のない結晶構造に由来する DM 相互作用で説明できます。

4. 「秩序を作る力」と「臨界性を決める力」の役割分担を明確化

代表的な双極子相互作用のエネルギーは Eu-Mn 間で 0.37 K、Eu-Eu 間で 0.62 K、Mn-Mn 間で 0.082 K と見積もられ、交換相互作用の集団的な尺度を表す $|\vartheta_w| = 20.4(1) \text{ K}$ より小さい値です。それでも双極子相互作用は距離に対してゆっくり減衰し、長波長極限でも効果が残るため、磁気秩序自体は交換相互作用が作り、転移点に十分近い領域の臨界挙動は長距離双極子相互作用が支配すると解釈できます。また、本物質は絶縁体であるため、金属に特有の RKKY 相互作用では説明できません。

3. 波及効果、今後の予定

本成果は、双極子相互作用駆動の平均場臨界性が絶縁性強磁性体だけでなく、内部に反強磁性的な副格子相関をもつフェリ磁性体にも成立することを示しました。これにより、強磁性体・フェリ磁性体・反強磁性体を横断して相転移の普遍性を理解するための重要な空白が一つ埋まりました。 $\text{Eu}_2\text{MnSi}_2\text{O}_7$ は、大きなスピンのみの磁気モーメント、非中心対称な結晶構造、フェリ磁性を併せもつことから、長距離相互作用と複雑な磁気秩序を調べる基準物質になります。

今後は、磁場でドメインを揃えた単結晶中性子回折により、磁気モーメントの傾きと磁気転移に伴うわずかな対称性低下を精密化することが課題です。さらに、反強磁性的な類縁物質を作製し、長距離相互作用に支配された反強磁性体も平均場普遍性に属するかを検証する予定です。

4. 研究プロジェクトについて

本研究は、以下の支援を受けて実施されました。

- ・ JSPS 科研費 (JP21H03732、JP22H05145、JP24K00572、JP25K01489、JP22J22265、JP22KJ0312、JP26H02027)
- ・ JST 創発的研究支援事業 (JPMJFR202V)
- ・ ANSTO Australian Centre for Neutron Scattering (Echidna、Wombat)

<用語解説>

*1 フェリ磁性 (Ferrimagnetism)

複数の磁気副格子のモーメントが主に反対向きに並ぶ一方、大きさが異なるため全体として磁化が残る磁気秩序。

*2 磁気双極子-双極子相互作用 (Magnetic dipole-dipole interaction)

各磁気モーメントが作る磁場を介して別のモーメントと結びつく相互作用。交換相互作用より弱い場合でも、長距離まで届く。

*3 平均場理論 (Mean-field theory)

各磁気モーメントが周囲から受ける複雑な相互作用を平均的な場として扱う近似。長距離相互作用が支配的な場合に良い記述となることがある。

*4 臨界現象・臨界指数 (Critical phenomena / critical exponents)

相転移温度の近くで秩序変数や応答が示す普遍的な変化。 θ は自発磁化の立ち上がり、 γ は磁化率の発散、 δ は転移温度での磁場応答を特徴づける。

***⁵ 交換相互作用 (Exchange interaction)**

量子力学的な起源をもつ、主に近距離の磁気モーメント間相互作用。本物質ではフェリ磁気秩序を安定化する。

***⁶ Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) 相互作用 (RKKY interaction)**

金属中を動き回る伝導電子を介して、離れた磁性原子同士の間働く長距離の磁気相互作用。

***⁷ Dzyaloshinskii-Moriya (DM) 相互作用 (Dzyaloshinskii-Moriya interaction)**

反転対称性がない結晶で許される反対称交換相互作用。磁気モーメントを完全な平行・反平行からわずかに傾ける。

<研究者のコメント>

「相転移の近くでは、微視的に最も強い相互作用が必ずしも臨界挙動を決めるとは限りません。今回、短距離の交換相互作用がフェリ磁気秩序を作る一方で、より弱くても遠くまで届く双極子相互作用が転移点近傍の“ルール”を決めることを示しました。Euを含むため中性子実験が難しい物質でしたが、磁気構造と臨界指数を同じ研究で結びつけられたことに意義があります。次は反強磁性体でも同じ普遍性が成り立つかを確認めたいと考えています。」(南部雄亮)

<論文タイトルと著者>

タイトル：Dipolar-driven mean-field criticality in the ferrimagnet $\text{Eu}_2\text{MnSi}_2\text{O}_7$ (フェリ磁性体 $\text{Eu}_2\text{MnSi}_2\text{O}_7$ における双極子相互作用による平均場臨界性)

著 者：Masahiro Kawamata, Maxim Avdeev, Yusuke Nambu

掲 載 誌：Physical Review Letters (2026)

DOI：https://doi.org/10.1103/5ftk-7qyg