

理論から直接評価する微弱な磁気相互作用と磁氣的性質

[1] 要旨

磁性体の性質は電子のもつスピン自由度がどのように並ぶかで決まる。多様なスピン配置が豊かな磁気・量子物性を産んでいるが、それらの配置はスピン間にはたらく相互作用で決まる。本研究では、量子力学の原理に根差した幅広い理論計算手法において、様々なスピン間相互作用を系統的に評価する汎用的な枠組みを構築した。これは、機能磁性体や量子材料の予測・探索・設計の研究を大いに加速する。

[2] 本文

電子は電荷に加えてスピンと呼ばれる小さな磁石としての性質を持ち、その配列が磁性体の性質を左右する。磁性体中の多くの電子が互いに絡み合う複雑な問題を理解するために、物質中の電子自由度のうちスピンだけに着目した「スピン模型」が広く用いられている。代表的な例であるハイゼンベルグ模型では、二つのスピン間のなす角に依存し、平行あるいは反平行のどちらを好むかを表す双線形相互作用だけを考える。

しかし近年、ハイゼンベルグ模型のような単純な双線形相互作用のみでは説明できない磁気構造を示す磁性体が報告されている。その中では、反強的な磁性体でありながら、その複雑な磁気構造に起因して強磁性体特有の物性を示すなど非自明な振る舞いが現れるものがある。双二次相互作用に代表される角度依存性がより複雑なスピン間相互作用は、主役となるハイゼンベルク相互作用に比べて大きさは小さいものの、そのような複雑な磁気構造の安定性を決める上では決定的な役割を担っていることが指摘されている。このようなハイゼンベルグ型を越えたスピン間相互作用を適切に取り入れたスピン模型を理論計算により構築することは、複雑な磁気構造を理解するだけでなく、新しい機能的磁性体を設計するための鍵となる課題である。

そこで、スピン模型を系統的に展開する手法とスピンのランダムに配向した仮想的な常磁性状態を求める手法を組み合わせた枠組み（図1）による手法が開発された。この枠組みでは、双線形・双二次相互作用を始めとしてより複雑なスピン間相互作用を系統的に計算することができる。また、スピン間相互作用を計算する基準状態として無秩序である「仮想的な常磁性状態」を用いることで、既存の他手法よりも恣意的な仮定に左右されにくいという利点もある。しかしながら、これまでの「仮想的な常磁性状態」の計算方法は、計算する時の基底関数の選択に制限があるという問題点があった。

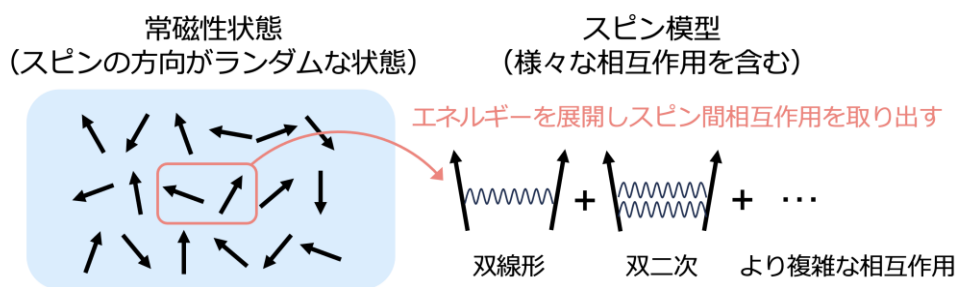


図1：スピン（黒矢印）がランダムに配向した常磁性状態（左）とそれを用いたスピン間相互作用（波線）の導出（右）のイメージ図。

最近、東京大学大学院工学研究科物理工学専攻のメンバーを中心とする研究グループは、この「仮想的な常磁性状態」を用いた枠組みを、より幅広い理論計算手法で利用可能な形で構築することに成功した。ここでは、「仮想的な常磁性状態」の計算を行う場合の基底関数に仮定を用いない。磁性に関わるエネルギー範囲の状態から実空間で基底を作り、これを用いてスピン間相互作用を評価する。その結果、複雑なスピン間相互作用の定量的な評価法が、量子力学の原理に根差した計算手法と組み合わせて使える汎用的なツールとして整備され、より多くの物質が計算可能となった。この成果は JPSJ の 2025 年 12 月号に掲載された。

この手法は、理論的によく理解されている単純な模型や鉄・コバルトといった典型的な金属磁性体に適用されることで妥当性が確認された。さらに、 $\text{Co}_{1/3}\text{TaS}_2$ のような四つのスピンの四面体の頂点方向を向く非共面的なスピン構造（図 2）が現れる磁性体に適用された。この特徴的な磁気構造のもとではあたかもスピンの全てが同じ方向をむいた強磁性体に似た電気伝導現象が観測され、次世代のスピン트로ニクス素子への応用が期待され注目を集めている。本手法により得られた双線形・双二次相互作用から構築したスピン模型は、この特異な磁気構造や磁気相転移の振る舞いをよく説明することが分かった。

また、ゼオライトの一つである $\text{K}_4\text{Al}_3(\text{SiO}_4)_3$ は、構成元素自体はすべて非磁性であるにもかかわらず反強磁性を示すが、その磁性は原子が位置しないはずの空隙に局在した電子が担う。本研究により、このような一見奇妙な系に対しても、本手法が多様なスピン間相互作用を定量的に見積もり、実験で観測される反強磁性転移温度などを説明し得ることが確認された。

これらの物質は従来の定式化では計算が困難であった物質であり、本手法がより幅広い物質に適用可能であることを示している。今後は、本手法を理論計算によるデータベースや材料探索の自動化技術と組み合わせることで、反強磁性スピン트로ニクス素子や渦状の磁気構造（スキルミオンなど）を利用した低消費電力デバイス候補の探索を加速することが期待される。

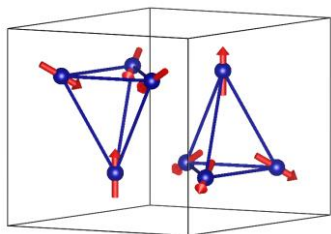


図 2 : $\text{Co}_{1/3}\text{TaS}_2$ において実験で観測されている非共面的な磁気構造。

原論文（2025 年 11 月 20 日公開済）

Calculation of the Biquadratic Spin Interactions Based on the Spin Cluster Expansion for Ab initio Tight-binding Models

T. Hatanaka, J. Bouaziz, T. Nomoto, and R. Arita, J. Phys. Soc. Jpn. **94**, 124709 (2025).

<情報提供：畑中樹人（東京大学大学院工学系研究科）

野本拓也（東京都立大学理学研究科）

有田亮太郎（東京大学大学院理学系研究科）>