

カイラル磁性体 EuPtSi の共鳴 X 線散乱 Resonant X-ray Scattering of Chiral Antiferromagnet EuPtSi

田端千紘¹, 松村武², 中尾裕則³, 道村真司⁴, 垣花将司⁵, 稲見俊哉⁶, 金子耕士⁷,
辺土正人⁸, 仲間隆男⁸, 大貫惇睦⁸

¹ 京都大学複合原子力科学研究所, 〒590-0494 大阪府泉南郡熊取町朝代西 2

² 広島大学大学院先端物質科学研究科, 〒739-8530 広島県東広島市鏡山 1-3-1

³ 高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 放射光, 〒305-0801 つくば市大穂 1-1

⁴ 埼玉大学研究機構, 〒338-8570 さいたま市桜区下大久保 255

⁵ 琉球大学大学院理工学研究科, 〒903-0213 沖縄県中頭郡西原町字千原 1

⁶ 量子科学技術研究開発機構放射光科学研究センター, 〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

⁷ 日本原子力研究開発機構物質科学研究センター, 〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 2-4

⁸ 琉球大学理学部, 〒903-0213 沖縄県中頭郡西原町字千原 1

Chihiro Tabata¹, Takeshi Matsumura², Hironori Nakao³, Shinji Michimura⁴, Masashi Kakihana⁵, Toshiya Inami⁶, Koji Kaneko⁷, Masato Hedo⁹, Takao Nakama⁹, and Yoshichika Ōnuki⁹

¹Institute for Integrated Radiation and Nuclear Science, Kyoto University, Kumatori, Osaka 590-0494, Japan

²Department of Quantum Matter, AdSM, Hiroshima University,
Higashihiroshima, Hiroshima 739-8530, Japan

³Photon Factory, Institute of Materials Structure Science, High Energy Accelerator Research Organization,
1-1 Oho, Tsukuba, 305-0801, Japan

⁴Department of Physics, Faculty of Science, Saitama University, Sakura, Saitama 338-8570, Japan

⁵Graduate School of Engineering and Science, University of the Ryukyus,
Nishihara, Okinawa 903-0213, Japan

⁶Synchrotron Radiation Research Center, National Institutes for Quantum and Radiological Science and
Technology, Sayo, Hyogo 679-5148, Japan

⁷Materials Sciences Research Center, Japan Atomic Energy Agency, Tokai, Ibaraki 319-1195, Japan

⁸Faculty of Science, University of the Ryukyus, Nishihara, Okinawa 903-0213, Japan

1 はじめに

EuPtSi は、磁気スキルミオン形成で知られる MnSi に代表される B20 型化合物と同じ空間群 $P2_13$ に属したカイラルな結晶構造をとり、 $T_N \sim 4.1$ K で 2 価の Eu ($4f^7$ 配置) による磁気秩序を起こす[1]。最近、良質で大型の単結晶試料が得られるようになり、これを用いたバルク物性の詳細な測定が行われている。その結果、有限温度・有限磁場でのみ存在する、MnSi 等で磁気スキルミオン相に対応する相、いわゆる“A 相”の存在が報告された[2, 3]。次いで行われた中性子散乱実験により、 T_N 以下の基底状態が MnSi 等と同様にヘリカル磁性であることが明らかになると同時に、A 相では磁気スキルミオン格子に特徴的な、外部磁場に垂直な六角形の回折パターンが観測された[4]。4f 電子系の磁気スキルミオンに関しては報告例が片手で数えるほどしか存在しないため、EuPtSi はその筆頭物質の一つとして大きな注目を集めている。

磁気スキルミオン状態は本質的に multi- Q 状態である。そのため、EuPtSi の A 相における磁気秩序が single- Q の多ドメイン状態なのか、multi- Q の単ドメ

イン状態なのかを明らかにすることは重要な意味を持つ。回折実験において、multi- Q 状態ならば（特殊な秩序波数の場合を除いて）高次の衛星反射が原理的には観測されるが、中性子散乱では Eu の吸収断面積が大きいため、そのような微弱な信号の検出は困難である。一方、中性子散乱と同様に回折実験である共鳴 X 線散乱では、Eu²⁺の L_2 , L_3 端での共鳴を利用することで比較的強い共鳴磁気信号が期待できる。そこで我々は、高次の衛星反射の探索および、放射光 X 線回折の高い Q 分解能を生かした秩序変数の詳細な温度・磁場依存性測定を目的とした共鳴 X 線散乱実験を行なった。

2 実験

実験は SPring-8 のビームライン BL22XU および Photon Factory のビームライン BL-3A にて、8T 超伝導磁石を搭載した同タイプの水平振り 2 軸回折計を使用し行なった。試料はブリッジマン法で作製した純料単結晶を(110)面でカットし表面を研磨したものを用いた。試料の冷却は液体 ⁴He 冷凍機にて行い、測定温度範囲は 1.6-4.2 K である。印加磁場（最

大 3 T) が試料の [111] 方向に、散乱面が (110) 面になるように試料を配置し、測定を実施した。使用 X 線エネルギーは Eu の L_2 吸収端に対応する 7.61 keV 付近である。

3 結果および考察

実験の結果、 T_N 以下で超格子反射位置に明瞭な共鳴信号が観測され、2 価の Eu による磁気秩序であることが示された (図 1)。ヘリカル磁気秩序相では秩序波数 $q_0 \sim (0.00, 0.20, 0.30)$ の磁気散乱が観測され、これらについて磁場依存性を測定した結果、結晶学的に等価な指数の反射にもかかわらず異なる強度変化を示した。この結果は $single-Q$ の多ドメイン状態を示唆しており、中性子散乱の報告と整合する。

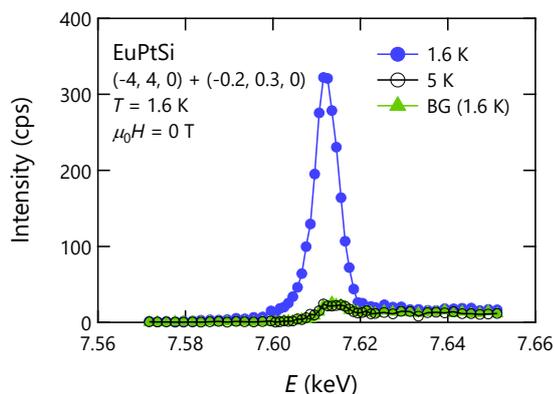


図 1 : Eu の L_2 吸収端付近における共鳴磁気散乱強度のエネルギー依存性

一方 A 相では、秩序波数 $q_A \sim (0.09, 0.20, 0.29)$ に対応する磁気散乱に加えて、 $q_A^{(1)} + q_A^{(2)}$ で記述される 2 次の衛星反射の観測に成功し、A 相が $triple-Q$ 秩序であることを明らかにした (図 2)。さらに、A 相において約 2.5 K 以上の温度域でホール抵抗・磁気抵抗の異常な増大が報告されているが[3]、この増分が急激に減少する温度領域で、秩序が短距離秩序的に

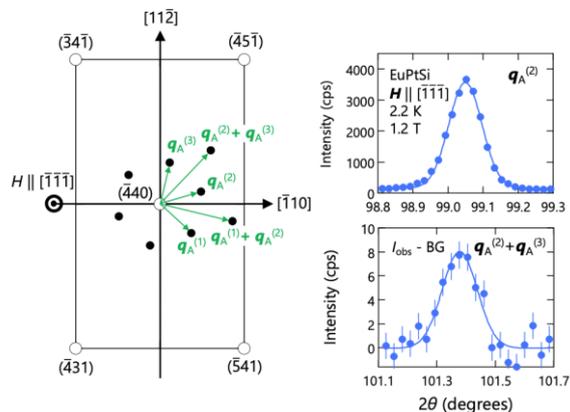


図 2 : A 相における共鳴磁気反射位置 (左) および共鳴磁気反射ピークプロファイル (右)

なる振る舞いを本実験において観測した。このことは、 $triple-Q$ 秩序が本系の輸送特性の異常に強く関与していることを示している。

まとめると EuPtSi の A 相では、(1) 磁場に垂直な秩序波数、(2) $triple-Q$ 秩序、(3) 隣接する $single-Q$ ヘリカル相、といった典型的な磁気スキルミオン相との共通点が認められた。しかしながら、磁気秩序の周期長は、これまでに知られているものとは大きく異なる。MnSi などの磁気スキルミオンは格子定数の 10 ~ 100 倍の長周期の秩序であり、結晶格子との結合は弱く、電場や磁場によって容易に駆動することができるとされている。一方 EuPtSi の場合、周期長は約 18 Å と格子定数のおよそ 3 倍弱しかなく、結晶格子との強い結合を示す振る舞いが観測されている。同様の短い周期長は YbNi₃Al₉ のカイラルソリトン格子や Gd 化合物のスキルミオン格子でも観測されており[5-7]、4f 電子系の特徴であると考えられる。

MnSi などにおける磁気スキルミオンに対する従来の理解では、周期長は交換積分 J と Dzyaloshinskii-Moriya (DM) 相互作用 D との比 J/D で与えられる。しかし 2 価の Eu の基底状態は軌道角運動量を持たないため、この理論を EuPtSi に適用する場合、DM 相互作用の起源をどのように説明するかが課題となる。そもそも上記の理論は連続体近似に基づいている上に、EuPtSi では交換積分よりも RKKY 相互作用がスピン間相関において支配的であると考えられるため、この理論を単純には適用できないものと思われる。最近では DM 相互作用ではなく、幾何学的フラストレーションや RKKY 相互作用を起源とする磁気スキルミオンも理論提案されている[8,9]。EuPtSi はこのような新しいスキルミオン発生メカニズムの可能性を拓く興味深い物質であるが、零磁場相での微弱な 1 次相転移の存在や、異なる結晶軸方向に磁場を印加した場合の磁気相など、未だに謎が多く残されている。実験と理論の両面からこれらについて詳しく調べ、本物質の磁気秩序の微視的メカニズムを解明することが今後の課題である。

4 まとめ

EuPtSi の Eu の L_2 端における共鳴 X 線散乱を磁場中で行い、本物質の磁気秩序の温度・磁場依存性を調べた。結果、零磁場相では $single-Q$ のヘリカル磁気秩序が、磁場誘起相 (A 相) では $triple-Q$ の磁気秩序が生じていることが明らかになった。この $triple-Q$ 秩序はスキルミオン格子に特徴的な性質を有しており、本系において 4f 電子によるスキルミオン状態が生じていることが示唆された。この磁気秩序の周期長は約 18 Å と、従来の DM 相互作用メカニズムによるスキルミオンのそれに比して 1 桁ほど小さく、異なるメカニズムによるスキルミオン発現の可能性が考えられる。今後、さらに実験を進め、磁気秩序の詳細や他の磁場方向についても明らかにしていくことが課題である。

謝辞

本研究は JSPS 科研費 JP15H05882, JP15H05885 (J-Physics), JP18H04329, JP17K05547, JP16K05453, JP18J15180, JP17K05130 の助成を受け行われたものです。

参考文献

- [1] D. G. Franco *et al.*, Phys. Rev. B **96**, 014401 (2017).
- [2] 榊原俊郎他, 日本物理学会第 72 回年次大会, 18aL21-11 (2017).
- [3] M. Kakihana *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **87**, 023701 (2018).
- [4] K. Kaneko *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 013702 (2019).
- [5] T. Matsumura *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **86**, 124702 (2017).
- [6] T. Kurumaji *et al.*, Science **365**, 914 (2019).
- [7] M. Hirschberger *et al.*, Nat. Commun. **10**, 5831 (2019).
- [8] T. Okubo *et al.*, Phys. Rev. Lett. **108**, 017206 (2012).
- [9] R. Ozawa *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **85**, 103703 (2016).

成果

1. “Resonant X-ray scattering study of magnetic order in chiral antiferromagnet EuPtSi”, C. Tabata, “J-Physics 2019 International Conference”, Kobe, Japan (September 2019). *Invited talk*
2. 「キラル反強磁性体 EuPtSi の共鳴 X 線散乱」, 田端千紘, 『日本物理学会第 74 回年次大会』, 14pS302-8, 九州大学, 2019 年 3 月 (シンポジウム講演)
3. “Magnetic Field Induced Triple-q Magnetic Order in Trillium Lattice Antiferromagnet EuPtSi Studied by Resonant X-ray Scattering”, C. Tabata, T. Matsumura, H. Nakao, S. Michimura, M. Kakihana, T. Inami, K. Kaneko, M. Hedo, T. Nakama, and Y. Ōnuki, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 093704 (2019).

* tabata.chihiro.3z@kyoto-u.ac.jp