

# アクシオン絶縁体候補物質 $\text{EuIn}_2\text{As}_2$ における磁気構造の再検討

## Reexamination of the magnetic structure in axion insulator candidate $\text{EuIn}_2\text{As}_2$

厳正輝<sup>1,\*</sup>, 藤代有絵子<sup>1</sup>, 十倉好紀<sup>1,2,3</sup>, 有馬孝尚<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 理化学研究所創発物性科学研究センター, 〒351-0198 埼玉県和光市広沢 2-1

<sup>2</sup> 東京大学大学院工学系研究科, 〒113-8656 東京都文京区本郷 7-3-1

<sup>3</sup> 東京大学東京カレッジ, 〒113-8656 東京都文京区本郷 7-3-1

Masaki GEN<sup>1,\*</sup>, Yukako FUJISHIRO<sup>1</sup>, Yoshinori TOKURA<sup>1,2,3</sup>, Taka-hisa ARIMA<sup>1</sup>

<sup>1</sup>RIKEN Center for Emergent Matter Science (CEMS), 2-1, Hirosawa, Wako 351-0198, Japan

<sup>2</sup>Department of Applied Physics, University of Tokyo, Tokyo 113-8656, Japan

<sup>3</sup>Tokyo College, University of Tokyo, Tokyo 113-8656, Japan

### 1 はじめに

2 価の Eu イオンを含む Zintl 相化合物は、電子のバンド構造と磁性との強い相関に起因する特異な輸送現象や巨大磁気抵抗発現の舞台として、近年盛んに研究されている。 $\text{EuIn}_2\text{As}_2$  はその代表物質の一つであり、面間反強磁性秩序に伴うアクシオン絶縁状態の実現が第一原理計算により提案されている[1]。本物質は Eu の三角格子が層状構造を形成し(空間群  $P6_3/mmc$ )、 $T_N = 17$  K で磁気転移を起こして容易面型の磁気異方性を示す[2]。中性子[3]および共鳴 X 線散乱[4]の先行実験が別グループによって行われているが、ゼロ磁場下における基底状態は反強磁性ではなく磁気変調ベクトル  $\mathbf{Q}_1 = (0, 0, 1/3)$  と  $\mathbf{Q}_2 = (0, 0, 1)$  の重ね合わせで特徴づけられる 2 重  $\mathbf{Q}$  の "broken helix" 構造であると結論づけられた。しかし、 $\mathbf{Q}_1$  の変調周期や磁気構造の対称性に関して先行研究の解釈には再検討の余地があった。また、理論的には予言されていない  $\mathbf{Q}_1$  磁気変調の起源についても理解されていなかった。

そこで、本研究では試料依存性も含めてゼロ磁場下での磁気構造を再調査すると共に、面内磁場印加による磁気構造変化についても詳しく調査した[5]。

### 2 実験

BL-3A の縦磁場超伝導マグネットが搭載された 2 軸回折計を用い、シリコンドリフト検出器 (SDD) を用いて測定を行なった。試料は同じバッチから取り出した異なる  $\text{EuIn}_2\text{As}_2$  単結晶を 4 ピース (#1~#4) 用意し、いずれも ( $HOL$ ) 面が散乱面になるようにアルミニウム板にワニスで固定してプローブに設置した。入射ビームエネルギーは Eu  $L_2$  吸収端の  $E = 7.612$  keV とした。

$\mathbf{Q}_1$  磁気変調の試料依存性の調査には、用意した 4 つの単結晶全てに対してゼロ磁場、5 K において逆格子空間 ( $00L$ ) ライン上で  $L$  スキャンを行った。また、試料#1 については  $H \parallel b$  の磁場を最大 1 T まで印加して、面内磁場印加に伴う磁気構造変化を詳しく調べた。また、パイログラフアイト (PG) の (006) 反

射を用いて 5 K にて 0 T、0.1 T、0.3 T の 3 つの磁場で偏光解析を行った。フォーカスした磁気反射は、 $\mathbf{Q}_1$  磁気変調については (2, 0, 11.7) と (-2, 0, 11.7)、 $\mathbf{Q}_2$  磁気変調については (0, 0, 9) と (0, 0, 17) である。

### 3 結果および考察

図 1(a) に、試料#1 に対してゼロ磁場下において 5 K と 30 K で観測された ( $00L$ ) ライン上の散乱プロファイルを示す。格子の Bragg 反射は  $L$  が偶数の位置にのみ現れることを踏まえると、5 K で観測されている  $L = 13.7$  付近及び  $L = 13$  のブラッグピークはそれぞれ変調ベクトル  $\mathbf{Q}_1 = (0, 0, q_{1z})$  と  $\mathbf{Q}_2 = (0, 0, 1)$  の磁気反射に対応する。ただし、 $\mathbf{Q}_1$  の変調周期については先行研究で報告されていた  $q_{1z} = 1/3$  ではなく  $q_{1z} = 0.290$  となっている。同様の測定を試料#2~#4 に対して行ったところ、 $q_{1z}$  の値は 0.253~0.308 と大きくバラついていることが分かった。また、 $q_{1z}$  の値が大きい試料ほど  $\mathbf{Q}_2$  ピークに対する  $\mathbf{Q}_1$  ピークの積分強度比  $I(\mathbf{Q}_1)/I(\mathbf{Q}_2)$  も大きいことが分かった。測定した 4 つの試料における  $I(\mathbf{Q}_1)/I(\mathbf{Q}_2)$  と  $q_{1z}$  の値の相関を図 1(b) にプロットした。

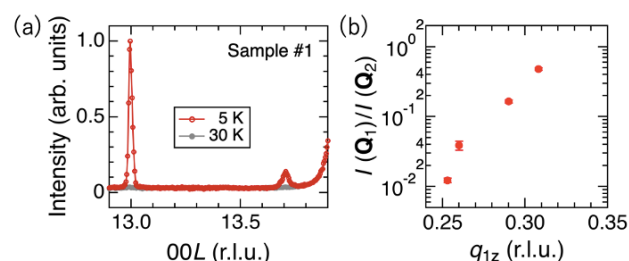


図 1 : (a) ゼロ磁場での  $L$  スキャンにより観測された共鳴 X 線散乱プロファイル (試料#1)。赤色が 5 K、灰色が 30 K のデータに対応。入射ビームのエネルギーは  $E = 7.612$  keV。 (b) 測定した 4 つの試料における  $I(\mathbf{Q}_1)/I(\mathbf{Q}_2)$  と  $q_{1z}$  の値の相関。縦軸は対数スケールでプロットしている。

また、我々はこれら4つの試料#1~#4に対して単結晶X線回折に基づく結晶構造解析を行い、それぞれ1.64(46)%, 1.10(39)%, 1.42(36)%, 0.83(35)%のEu欠損が見られることが分かった。図2に、4つの試料における $q_{1z}$ の値とEuの欠損割合の対応をプロットしており、正の相関が見られる。以上の結果を踏まえると、 $\text{EuIn}_2\text{As}_2$ における $\mathbf{Q}_1$ 磁気変調の起源はEu欠損によりドーパされたホールキャリアが媒介するRKKY相互作用であると考えられる。実際に、先行研究のARPES実験によって3次元的なホール面が観測されており[6]、またホール抵抗測定によってもキャリア密度の試料依存性が報告されていた[7]。我々の新たな実験結果によって、 $\text{EuIn}_2\text{As}_2$ では試料中のEu欠損によって理論的に提案されている共線反強磁性の発現が阻害され、不整合周期のbroken helix状態が発現していることが明らかになることができた。

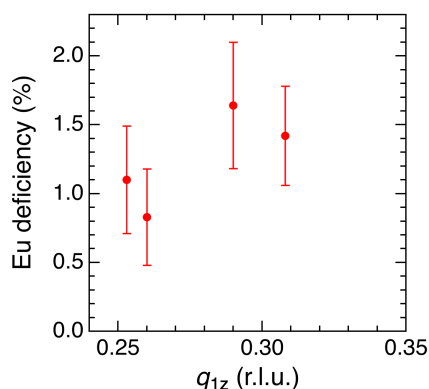


図2: 4つの試料におけるEuの欠損割合と $q_{1z}$ の値の対応。

続いて、試料#1 ( $q_{1z}=0.290$ )における $H//b$ の面内磁場印加に伴う磁気構造変化について述べる。図3(a)に5Kにおける磁化曲線、図3(b)に同じ温度で測定した $\mathbf{Q}_1$ ピークと $\mathbf{Q}_2$ ピークの積分強度の磁場依存性を示す。 $H_{c1}=0.2$ Tでのメタ磁性転移後も、 $\mathbf{Q}_1$ ピークと $\mathbf{Q}_2$ ピークはどちらも強度が残っている。なお、 $q_{1z}$ の値にはほとんど磁場依存性は見られなかった。また、 $H_{c1}$ より高磁場である0.3Tでの偏光解析によって、 $\mathbf{Q}_1$ と $\mathbf{Q}_2$ はどちらも $ab$ 面内かつ磁場垂直成分にのみ磁気変調成分を有していることが明らかになった。この結果は、高磁場相ではfan構造、もしくは傾角反強磁性構造をベースにした磁気構造が発現していることを示唆する。

図3(c)に、0.1~0.4Tの間で0.02T刻みで測定した(00L)ライン上でのLスキャンの散乱強度を、対数スケールのカラープロットで示す。 $L=13.71$ 及び $L=13$ 付近の強度がそれぞれ $\mathbf{Q}_1$ ピークと $\mathbf{Q}_2$ ピークに対応する。それらに加えて、 $H_{c1}$ 近傍では $L=13.13$

付近と $L=13.29$ 付近にも有限の強度が見られており、これらはそれぞれ $3\mathbf{Q}_1$ と $\mathbf{Q}_2-\mathbf{Q}_1$ の高調波成分に対応すると考えられる。また、 $2\mathbf{Q}_1$ に対応する $L=13.42$ 付近では $H_{c1}$ より高磁場側でも強度は見られていないことから、 $\mathbf{Q}_1$ に由来する通常の(すなわち $1\mathbf{Q}$ ) fan構造は発現していないと考えられる。磁場中での $\mathbf{Q}_2-\mathbf{Q}_1$ の存在も踏まえると、磁場印加によっても $\mathbf{Q}_1$ と $\mathbf{Q}_2$ の重ね合わせである2重 $\mathbf{Q}$ の性質は維持されていることが示唆される。磁場中での比較的強い $3\mathbf{Q}_1$ 変調の存在は、 $H_{c1}$ 近傍で磁場垂直方向に矩形波型の変調を持つfan構造の実現を示唆しており、非常に特徴的である。 $3\mathbf{Q}_1$ 発現の微視的メカニズムについてはまだ明らかになっておらず、今後の課題である。

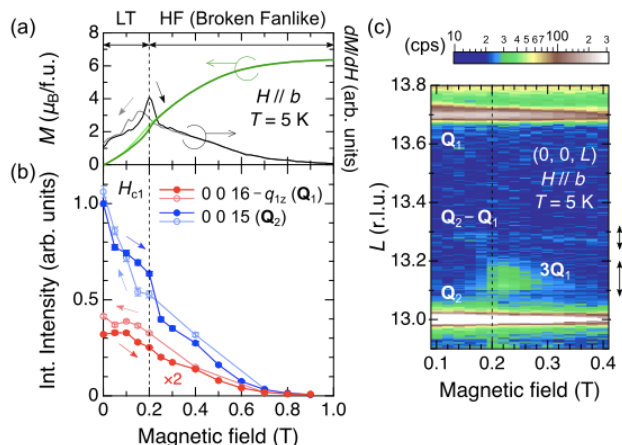


図3: (a) 磁場方向 $H//b$ 、5Kにおける磁化曲線。(b) 磁場方向 $H//b$ 、5Kにおいて観測された $\mathbf{Q}_1$ ピークと $\mathbf{Q}_2$ ピークの積分強度の磁場依存性。(c) メタ磁性転移磁場 $H_{c1}$ 近傍で観測された共鳴X線散乱強度のカラープロット。

#### 4 まとめ

本研究では、アクシオン絶縁体候補物質 $\text{EuIn}_2\text{As}_2$ に対する共鳴X線散乱実験を行い、先行研究で提案されていた2重 $\mathbf{Q}$ のbroken helix構造を再検討した。その結果、 $\mathbf{Q}_1$ 磁気変調は不整合周期であり、変調周期 $q_{1z}$ とその強度には試料依存性が見られることが分かった。単結晶X線回折に基づく結晶構造解析の結果と照らし合わせて、 $\text{EuIn}_2\text{As}_2$ における $\mathbf{Q}_1$ 磁気変調の起源はEu欠損によるホールドープに起因するRKKY相互作用であることを初めて提案した。この結果は、アクシオン絶縁状態の実現には $\text{EuIn}_2\text{As}_2$ におけるキャリア補償が有効であることを示唆している。また、2重 $\mathbf{Q}$ の性質は面内磁場印加によっても維持されており、本系に特有の特殊なfan構造が発現することが明らかになった。

謝辞

本研究にあたり、PF スタッフである佐賀山基氏と中尾裕則氏には多大なサポートをいただきました。深く感謝申し上げます。また、本研究は日本学術振興会科学研究費 (23K13068)の助成を受けて行われました。

参考文献

- [1] Y. Xu *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **122**, 256402 (2019).
- [2] Y. Zhang *et al.*, *Phys. Rev. B* **101**, 205126 (2020).
- [3] S. X. M. Riberolles *et al.*, *Nat. Commun.* **12**, 999 (2021).
- [4] J.-R. Soh *et al.*, *Nat. Commun.* **14**, 3387 (2023).
- [5] M. Gen *et al.*, arXiv:2403.03022.
- [6] T. Sato *et al.*, *Phys. Rev. Res.* **2**, 033342 (2020).
- [7] J. Yan *et al.*, *Phys. Rev. Res.* **4**, 013163 (2022).

\* masaki.gen@riken.jp