

反転対称性のない磁性体 EuIrGe_3 におけるサイクロイド磁気構造 Cycloidal magnetic ordering in noncentrosymmetric EuIrGe_3

松村武¹, 倉内憲伸¹, 塚越舜¹

¹広島大学 大学院先進理工系科学研究科
〒739-8530 広島県東広島市鏡山 1-3-1

¹ Graduate School of Advance Science and Engineering, Hiroshima University,
Higashi-Hiroshima 739-8530, Japan

1 はじめに

EuIrGe_3 は正方晶 BaNiSn_3 型結晶構造をもつ磁性体である。結晶の空間群は $I4mm$ で、4 回軸のほか、 c 軸を含む鏡映面をもつが、空間反転対称性をもたない、 c 軸方向に極性をもった結晶構造である。Eu は 2 価となっていて、 $4f^7, S=7/2, L=0$ の状態にある。 $L=0$ であるため、非常に等方的な磁性を示しながらも、 $T_N=12.2$ K, $T_N^*=7.0$ K, $T_N^*=5.0$ K で 3 段階の磁気相転移を起こす[1,2]。同じ結晶構造をもつ EuNiGe_3 では、らせん磁気秩序が実現し、磁場中中間相では異常ホール効果が観測され、磁気スキルミオン格子の形成も示唆されている[3,4]。本研究では、結晶構造とらせん磁性の関係を探索する興味から、 EuIrGe_3 におけるゼロ磁場各秩序相での磁気構造を調べ、らせんヘリシティの観測、および、 ab 面内磁場中でのドメイン選択について実験を行った。

2 実験

全く未知の磁気回折ピークを探索するための最初の実験は、J-PARC の SENJU を使った中性子回折によって行われた。そこで確定された各磁気相でのピーク位置情報をもとに、より詳細な磁気構造を調べるための共鳴 X 線回折実験を BL-3A の超伝導マグネットを利用して行った (図 1)。(HOL) を散乱面にとり、回折 X 線の偏光解析や、上流に設置された移相子を使った円偏光依存性などの測定により、サイクロイド磁気構造の決定、および、サイクロイドらせんヘリシティの決定を行った [5,6]。

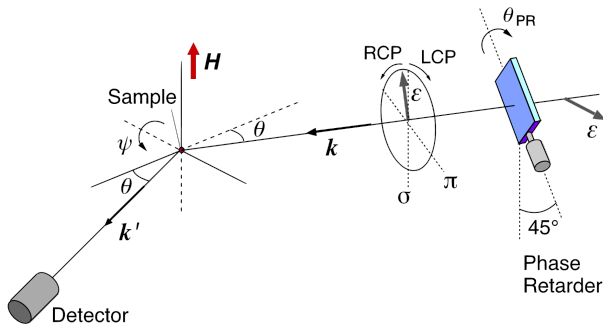


図 1: BL-3A での実験配置。散乱ベクトルは c 軸と平行。 ψ 軸で試料を回転させて磁場方向を変える。

3 結果および考察

まず、最初の磁気秩序相である $T < T_N$ では、 $q=(0, 0, 0.792)$ で伝播する縦波サイン波型構造を示す。散乱面と垂直な磁気成分が存在しないことが偏光解析で示されたため、 c 軸成分しか持たない構造であることから、縦波サイン波型構造であることがわかる。秩序状態で生じるわずかな異方性によって c 軸に揃っているが、この構造のままだと必然的にモーメントが小さなサイトが残ることとなり、このまま最低温度まで下がることは交換相互作用のエネルギー利得の面からも好ましくはない。すべての Eu が $7\mu_B$ の磁気モーメントを出すべく、サイクロイド、またはらせん構造をとるほうがよい。

それが起こるのが $T < T_N^*$ である。まず、 $T < T_N^*$ で $q=(\delta, 0, q \sim 0.792)$ の波数で ac 面内で磁気モーメントが回転するサイクロイド構造となる。等価な 4 つのドメインが生じる。また、 $T < T_N^*$ では、サイクロイド面が 45° 回転し、 $q=(\delta, \delta, q \sim 0.792)$ の波数で $[110]$ - $[001]$

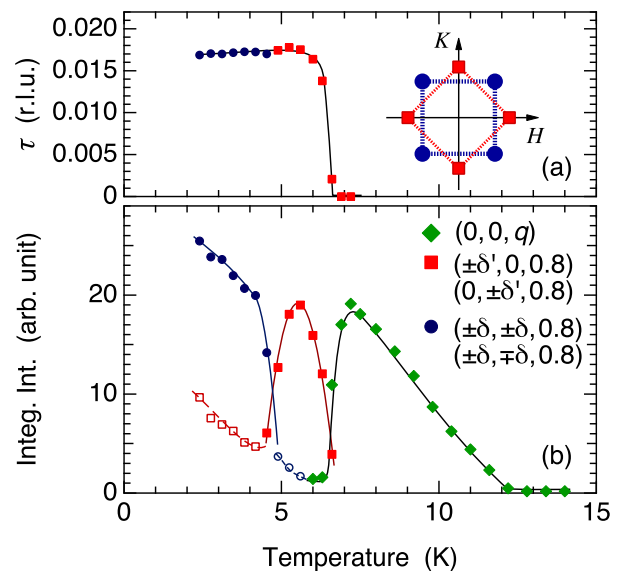


図 2: (a) $T < T_N^*$ における、伝播ベクトルの L 軸からのずれの大きさの温度変化。(b) 磁気回折ピーク積分強度の温度変化。

面内で回転するサイクロイドになる。これらも偏光解析の詳しい測定結果からわかった事実である。興味深いのは、おそらく RKKY 相互作用の安定点であるはずの L 軸上の $q=(0, 0, q)$ を保ったままサイクロイドを作るのではなく、わずかに L 軸からずれた波数をとる点である。これは正方晶 $I4mm$ の対称性を維持しながらサイクロイドを作るために必然的に起こることであって、 $q=(0, 0, q)$ を保ちながらサイクロイドを作ろうとすると正方晶を崩す必要があるという対称性の制約から起こる現象だと考えている [5].

図 3 に各相での磁気構造を示す。(b)(c) はいずれも 4 つのドメインを形成する磁気構造であり、実際、回折ピークは図 2(a) 内挿図に示すように各相で 4 つが観測される。次に、これら 4 つのドメインについて、BL-3A に設置されたダイヤモンド移相子を使って円偏光 X 線を作り、回折強度の円偏光依存性を調べた。例を図 4 に示す。その結果、4 つのドメインでのサイクロイドらせんの巻き方（ヘリシティ）はそれぞれで一つに定まっており、また、結晶構造がもつ 4 回軸対称性と c 軸を含んだ鏡映対称性をそのまま反映したヘリシティになっていることがわかった [6]。このことは、特定のヘリシティが選択される形でサイクロイド磁気構造が形成されることを示しており、Dzyaloshinskii-Moriya 型の反対称相互作用が確かに存在していることを示す結果である。

また、磁場をかけた実験も行い、磁場によってドメインが選択される様子も観測された [6]。サイクロイド面が磁場と垂直になるようにドメイン選択が起きるといった結果であり、これは自然な結果であると言える。ただし、 $T < T_N^*$ の低温相で磁場を [100] 方向にかけた場合などは、サイクロイド面が [010]-[001] になり、 $T_N^* < T < T_N'$ の中間相での構造が選ばれる。また $T_N^* < T < T_N'$ の中間相で磁場を [110] 方向にかけると、サイクロイド面が [1-10]-[001] になり、低温相での構造が選ばれるといった現象も起きる。

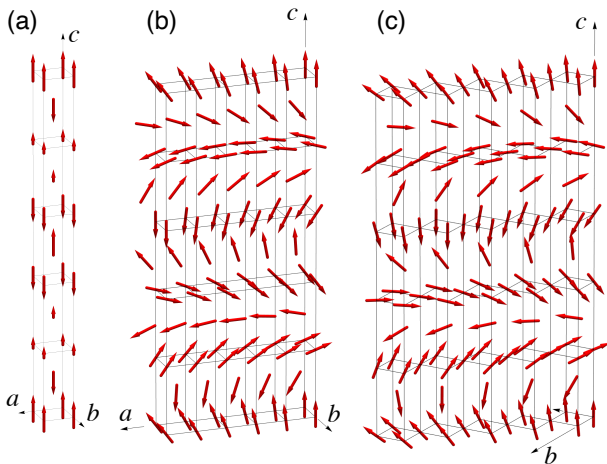


図 3 : EuIrGe₃ の磁気構造。(a) $T_N' < T < T_N$, (b) $T_N^* < T < T_N'$, (c) $T < T_N^*$.

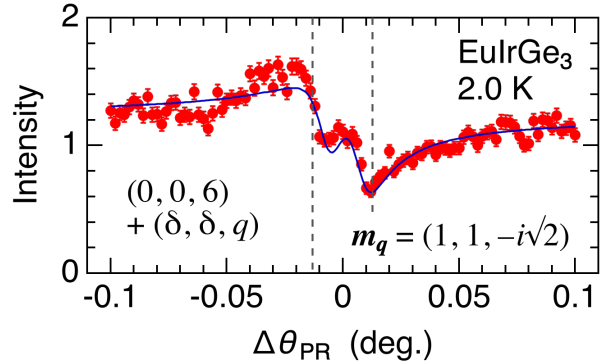


図 4 : 低温相でのサイクロイドらせんヘリシティを決める円偏光依存性測定の結果。

4 まとめ

反転心を持たないが鏡映面をもつ正方晶磁性体 EuIrGe₃ での逐次相転移で、縦波サイン波型構造からサイクロイド磁気構造へ変化の様子を詳細に調べた。さらに、移相子を使った共鳴 X 線散乱強度の円偏光依存性測定により、サイクロイドのヘリシティを決定し、反対称相互作用によって確かに各磁気ドメインごとにヘリシティが一つに選択されていることが確認された。

謝辞

本研究は JSPS 科研費 JP20H01854 の助成を受けたものです。

参考文献

- [1] M. Kakihana *et al.*, *J. Alloys Compd.* **694**, 439 (2017).
- [2] A. Maurya *et al.*, *J. Magn. Magn. Mater.* **401**, 823 (2016).
- [3] X. Fabrèges *et al.*, *Phys. Rev. B* **93**, 214414 (2016).
- [4] W. Iha *et al.*, *JPS Conf. Proc.* **30**, 011092 (2020).
- [5] T. Matsumura *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* **91**, 073703 (2022).
- [6] K. Kurauchi *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* **92**, 083701 (2023).

* tmatsu@hiroshima-u.ac.jp