

# 共鳴 X 線回折実験による $\text{GdOs}_2\text{Si}_2$ の多彩な磁気秩序状態の解明 Various magnetic ordering of $\text{GdOs}_2\text{Si}_2$ studied by resonant x-ray diffraction

林浩章<sup>1,2\*</sup>, 吉田紘行<sup>3</sup>, 山浦一成<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>物質・材料研究機構 国際ナノアーキテクトニクス研究拠点, 〒305-0044 茨城県つくば市並木 1 丁目

<sup>2</sup>北海道大学大学院 総合化学院, 〒060-0810 北海道札幌市北区北 10 条西 8 丁目

<sup>3</sup>北海道大学 理学部 物理学科, 〒060-0810 北海道札幌市北区北 10 条西 8 丁目

Hiroaki HAYASHI<sup>1,2\*</sup>, Hiroyuki K. YOSHIDA<sup>3</sup>, and Kazunari YAMAURA

<sup>1</sup>National Institute for Materials Science, Research Center for Materials Nanoarchitectonics,  
1-1 Namiki, Tsukuba, Ibaraki 305-0044, Japan

<sup>2</sup>Graduate School of Chemical Sciences and Engineering, Hokkaido University,  
Sapporo, Hokkaido 060-0810, Japan

<sup>3</sup>Department of Physics, Faculty of Science, Hokkaido University, Sapporo, Hokkaido 060-0810, Japan

## 1 はじめに

物質中のスキルミオン格子は、2009 年に  $\text{MnSi}$  においてはじめて確認された[1]。その起源は結晶構造の空間反転対称性の破れに起因した、DM 相互作用だと考えられている。一方、最近では空間反転対称性が保たれた系におけるスキルミオン格子の形成に大きな注目が集まっている。例えば、正方晶  $\text{ThCr}_2\text{Si}_2$  型構造（空間群： $I4/mmm$ ）に分類される  $\text{GdRu}_2\text{Si}_2$  は [2]、反転対称性を有するスキルミオン物質として報告されており[3,4]、その起源を説明する新しい理論も提案されている[5]。

我々は、このような反転対称性を有するスキルミオン物質の開発を目的として物質探索を行い、 $\text{GdRu}_2\text{Si}_2$  の類似物質である  $\text{GdOs}_2\text{Si}_2$  の単結晶育成に初めて成功した。本物質は  $\text{GdRu}_2\text{Si}_2$  と同様の  $\text{ThCr}_2\text{Si}_2$  型構造をとり [6]、磁化・比熱・電気伝導特性から多彩な温度・磁場相図が示されている。また、一部の相でホール抵抗の異常が確認され、局在・遍歴電子の協奏による複雑な磁気構造が予測されている。本研究では、これらの磁気秩序相の微視的機構を調べるため、KEK Photon Factory (PF) の BL-3A, 4C において共鳴 X 線散乱実験を行った。

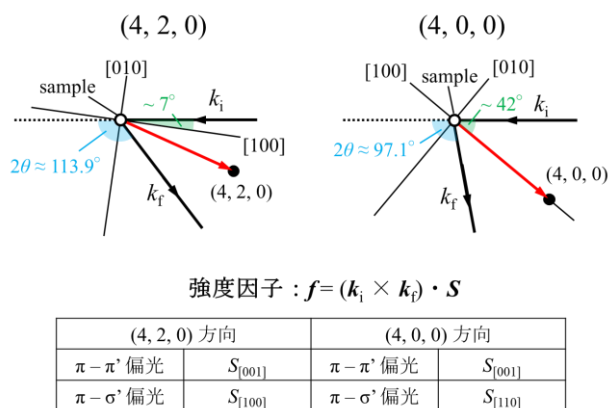


図 1：試料セッティングの様子。

## 2 実験

測定は PF BL-3A および BL-4C にて、 $E = 7.932 \text{ keV}$  の硬 X 線と、シリコンドリフト検出器を用いて行った。 $\text{GdOs}_2\text{Si}_2$  単結晶試料 ( $1.08 \times 0.50 \times 0.22 \text{ mm}^3$ ) は、結晶の [100] 方向が散乱面と平行になるように GE ワニスで固定し (図 2)、逆格子点  $(4, 2, 0)$  と  $(4, 0, 0)$  周りの磁気反射を探索した。測定温度・磁場範囲は、それぞれ  $2 \text{ K} - 35 \text{ K}$ ,  $0 \text{ T} - 4 \text{ T}$  である。

## 3 結果および考察

温度・磁場相図における Phase I – III の各相について、逆格子点  $(4, 0, 0)$  周りの磁気反射の探索を行ったところ、 $\text{Gd } L_2$  端 ( $2p \rightarrow 4f$  遷移： $E = 7.932 \text{ keV}$ ) での共鳴散乱による超格子反射が、 $(4 - \delta, 0, 0)$  の位置に確認された (図 2)。各相における  $\delta$  を詳しく見ていくと、Phase I では  $\delta = 0.28$  に 1 つ、Phase II では  $\delta = 0.19, 0.26, 0.31$  に 3 つの超格子反射が確認された。また、両相の相境界付近では、これら 4 つの反射がすべて観測されることから、磁場に対して一次転移を示し、両相が混在している状態が示唆される。

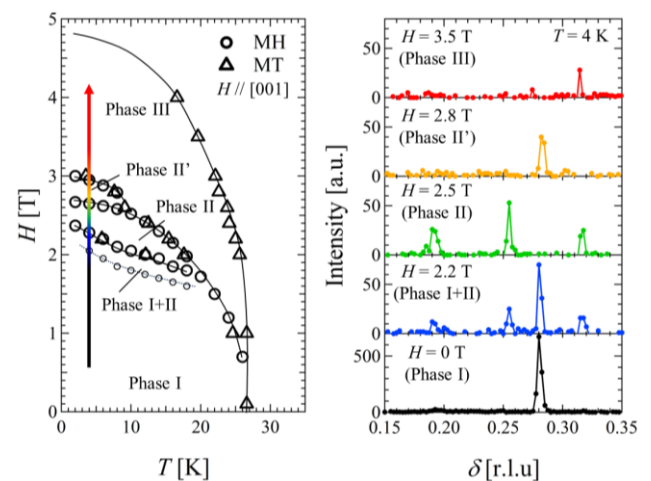


図 2： $\text{GdOs}_2\text{Si}_2$  の温度・磁場相図 (左) と、各相における  $(4 - \delta, 0, 0)$  逆格子スキャンの結果 (右)。

Phase II'では、Phase Iで見られた  $\delta = 0.28$  の反射が復活した。一方で、反射の強度は Phase I と比べて 10 分の 1 程度に小さくなっている。Phase III では  $\delta = 0.31$  に 1 つの反射が確認された。

次に、Phase II における磁気秩序状態を明らかにするため、 $\delta = 0.19, 0.26, 0.31$  の 3 点で見られた反射の重ね合わせた点  $(4-\delta, -\delta, 0)$  の探索を行った。結果は図 3 に示すように、 $\delta \sim 0.19, 0.31$  で double-Q 状態を示唆する磁気反射が確認された。Phase II では、我々の実験によって異常ホール効果を観測しており、GdRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> との比較からも、スキルミオンなどのトポロジカルに非自明な磁気構造が発現していると考えられる。一方で、 $\delta = 0.26$  の重ね合わせた点では、反射は確認されなかった。

最後に、 $H = 0$  T (Phase I) における  $(4-\delta, 0, 0)$  逆格子スキャンで観測された超格子反射の温度依存性を図 4 に示す。2 K から 10 K において、反射は  $\delta = 0.28$  の位置に観測された。一方で 10 K 以上では、温度の上昇に伴って反射が見られる  $\delta$  の値は増加し、転移温度 ( $T_N = 26.6$  K) 近傍では  $\delta = 0.29$  となる。これは、温度上昇によって短い周期構造へと伝搬ベクトルが変調していることを表している。このような磁気構造の僅かな変化は、磁化測定では観測されておらず、本測定で明らかとなった GdOs<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の新たな一面である。

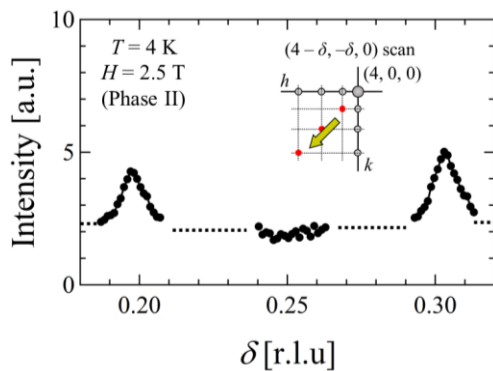


図 3 : Phase II において、 $(4-\delta, -\delta, 0)$  で確認された超格子反射 ( $\delta \sim 0.19, 0.31$ )。

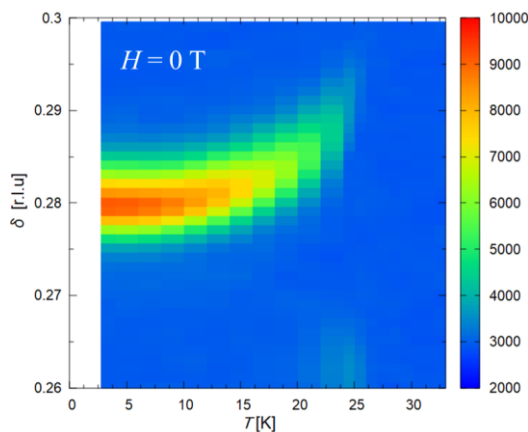


図 4 :  $H = 0$  T における、 $\delta$  の温度依存性。

#### 4 まとめ

本研究では、GdOs<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の多彩な磁気秩序相を明らかにするため、単結晶試料を用いた共鳴 X 線回折実験を行った。Phase I では、 $(4-\delta, 0, 0)$  で確認された  $\delta = 0.28$  の伝搬ベクトルが、温度依存性を示すことがわかった。また、Phase II における  $(4-\delta, -\delta, 0)$  の超格子反射 ( $\delta \sim 0.19, 0.31$ ) は、スキルミオンをはじめとした Multi-Q 状態の発現を示唆している。

今回の実験では、GdOs<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の各相における詳細な磁気構造の解明には至らなかったが、追加測定や偏光解析など、次回につながる充実した内容となった。今後も GdOs<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の磁気秩序相の微視的機構を明らかにするため、磁化・比熱・電気伝導特性と照らし合わせながら共鳴 X 線回折実験を行い、考察を深める。

#### 謝辞

本研究にあたり、BL-3A, 4C のビームライン担当者である中尾裕則氏には、実験原理から測定に至るまで丁寧にご指導いただきました。本実験は申請者にとって初めての PF 実験でしたが、充実した内容となりました。ありがとうございます。また本研究は、日本学術振興会科学研究費 (JP22H04601) および公益財団法人大倉和親記念財団 (2022-11) の助成を受けて行われました。

#### 参考文献

- [1] A. Neubauer *et al.*, Phys. Rev. Lett. **102**, 186602 (2009).
- [2] K. Hiebl *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **37**, 287-296 (1983).
- [3] N. D. Khanh *et al.*, Nat. Nanotech. **15**, 444 - 449 (2020).
- [4] Y. Yasui *et al.*, Nat. Commun. **11**, 5923 (2020).
- [5] M. Hirschberger *et al.*, New J. Phys. **23**, 023039 (2021).
- [6] H. Hayashi *et al.*, JPS Conf. Proc. **38**, 011103 (2023).

#### 成果

1. H. Hayashi, H. K. Yoshida, K. Yamaura, "Topological Hall effect and skyrmions in GdOs<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>", Oral presentation, The 32nd Annual Meeting of MRS-J, Yokohama, Japan (2022).

\* HAYASHI.Hiroaki@nims.go.jp