

CuB₂O₄ のカイラル螺旋磁気秩序の検証

青学大理工, JASRI^A

高阪勇輔, 矢野真一郎, 嘉屋絵美, 中尾裕也, 大隅寛幸^A, 秋光純

Chiral Helimagnetism in CuB₂O₄

Department of Physics and Mathematics, Aoyama-Gakuin University, JASRI^A,

Y. Kousaka, S. Yano, E. Kaya, Y. Nakao, H. Ohsumi^A and J. Akimitsu

§1 はじめに

一般的に、右巻きと左巻きの螺旋は縮退しており、右巻きと左巻きの螺旋が同じ割合で混在するため、片巻のみの螺旋秩序が存在することは希有である。しかし、Dzyaloshinski-Moriya 相互作用によりこの縮退が解け、右巻き（左巻き）のみの単一磁区を持つカイラル螺旋磁気構造が生成される。カイラル螺旋磁気秩序が実現した場合のみ、低角側と高角側の磁気衛星反射強度が非対称となり、この非対称性を観測することでカイラル螺旋磁気秩序の検証が可能となる。カイラル螺旋磁性における螺旋の周期は交換相互作用と DM 相互作用との比で決定されるため、必然的に長周期の螺旋秩序となり、磁気散乱強度は非常に弱いことが予想される。よって、優れた角度分解能、高輝度特性、偏光特性を備えた放射光を用いた測定が不可欠である。

我々が注目した CuB₂O₄ は tetragonal の空間群 *I42d* に属し、20 K で弱強磁性である整合相、10 K でソリトン格子を形成した後に螺旋磁性である非整合相に転移する。本物質の磁性は、岸根の提案する lattice chiral XY model で解釈可能であり、本物質の整合-非整合転移はカイラルソリトン格子形成により理解される。また、空間群により、単位胞内に異なるカイラリティの螺旋が共存する特異な磁気構造（反強のカイラル螺旋磁気構造）が期待される。そこで、非共鳴円偏光 X 線磁気回折実験は本物質のカイラル螺旋磁気秩序を検証するための強力な手法となりうる。しかし、本実験手法はまだ確立されていないため、本研究は<1,1,1>方向に左巻きのカイラル螺旋磁性であることが既に確認されている MnSi ($T_c = 29.5$ K) を用い、非共鳴円偏光 X 線磁気回折法の確立を目的として測定を行った。

§2 実験条件

本実験は、SPring-8, BL46XU にて測定を行った。実験条件は、入射 X 線エネルギー $E_i = 12.62$ keV ($\lambda = 0.98$ Å)、磁場を<1,1,1>方向に印加した。(1,1,1)面, (3,3,2)面, (1,1,-2)面に鏡面加工した試料を用いて測定を行った。

§ 2.1 バックグラウンドの評価

磁気衛星反射の散乱強度は基本反射と比べて遙かに小さいため、出来るだけバックグラウンドが小さいことが望ましい。しかし、(1,1,1)面に鏡面加工した試料では磁気衛星反射が観測される付近のバックグラウンドが特別に大きいことを確認した。Fig.1 に(1,1,1)まわりの $\langle 1,1,1 \rangle$ 及び $\langle 1,1,-2 \rangle$ 逆格子面上の散乱強度分布を示す。 $\langle 1,1,1 \rangle$ 方向からわずかに傾いたストリークが観測されており、このストリークが磁気衛星反射の搜索領域を貫いている。このストリークの存在が想定より遙かに大きなバックグラウンドを与えるため、磁気衛星反射の観測を極めて困難にしている。

強大なストリークの原因が試料表面を(1,1,1)に加工したことによる CTR 散乱であると考え、試料表面を(3,3,2)及び(1,1,-2)と $\langle 1,1,1 \rangle$ 方向から明らかにずれた面を鏡面加工した。Fig.2 に(3,3,2)に鏡面加工した試料の(1,1,1)まわりの $\langle 1,1,1 \rangle$ 及び $\langle 1,1,-2 \rangle$ 逆格子面上の散乱強度分布を示す。Fig.1 の結果と比べて、ストリークを $\langle 1,1,1 \rangle$ から大きくずらすことが出来た。また、(1,1,-2)に鏡面加工した試料も $\langle 1,1,1 \rangle$ 方向にストリークは確認されず、バックグラウンドを大幅に減らすことに成功したため、これらの試料を本測定に用いた。

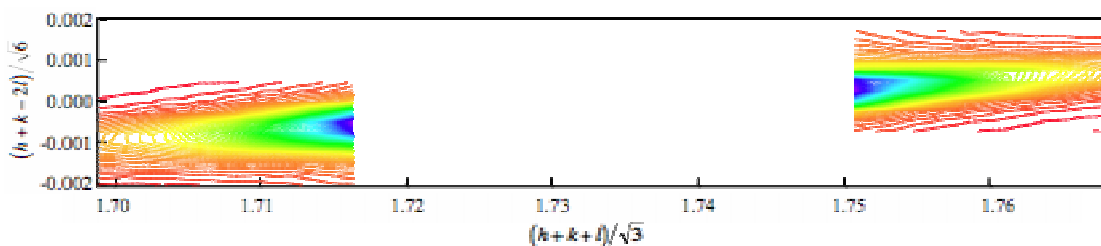


Fig.1 (2,2,2)周辺の散乱強度分布 (但し、 $\langle 1,1,1 \rangle$ 方向は -2 走査、 $\langle 1,1,-2 \rangle$ 方向は 走査に対応)

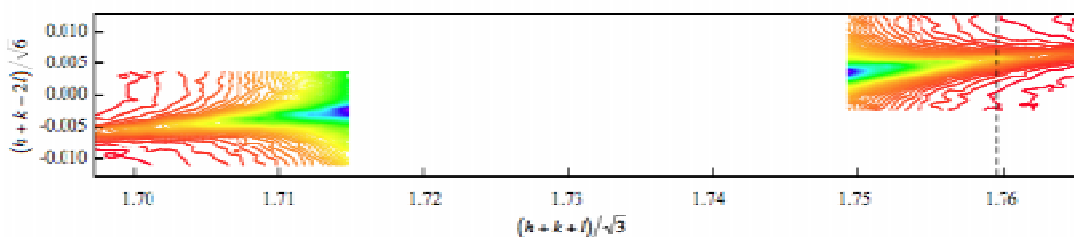


Fig.2 (1,1,1)周辺の散乱強度分布 (但し、 $\langle 1,1,1 \rangle$ 方向は -2 走査、 $\langle 1,1,-2 \rangle$ 方向は 走査に対応)

§ 2.2 (3,3,2)面に面出しした試料における磁気散乱衛星反射の搜索

MnSi は強磁場印加により螺旋軸方向が $\langle 1,1,1 \rangle$ 方向から磁場印加方向に変化する。そのため、本測定は磁場強度は螺旋軸のドメインが単一になることが保証される再弱の磁場強度 (600 Oe)、温度は冷凍機の実現する最低温度 (7 K) で行った。

しかし、有意な磁気散乱強度の観測には至っていない。考えられる原因として、印加磁場が $\langle 1,1,1 \rangle$ 方向からズレたことが考えられる。本測定では磁場方向が出来るだけ $\langle 1,1,1 \rangle$

と平行になるように印加したが、 1° 前後の誤差が予想される。MnSi は螺旋軸が磁場方向の影響を受けるため、磁場方向が $\langle 1,1,1 \rangle$ 方向からズレた可能性を否定できない。しかし、印加磁場が $\langle 1,1,1 \rangle$ 方向からどの程度のズレが生じたかを評価することが出来ないため、磁気衛星反射がどこに観測されるかを予想することは困難である。

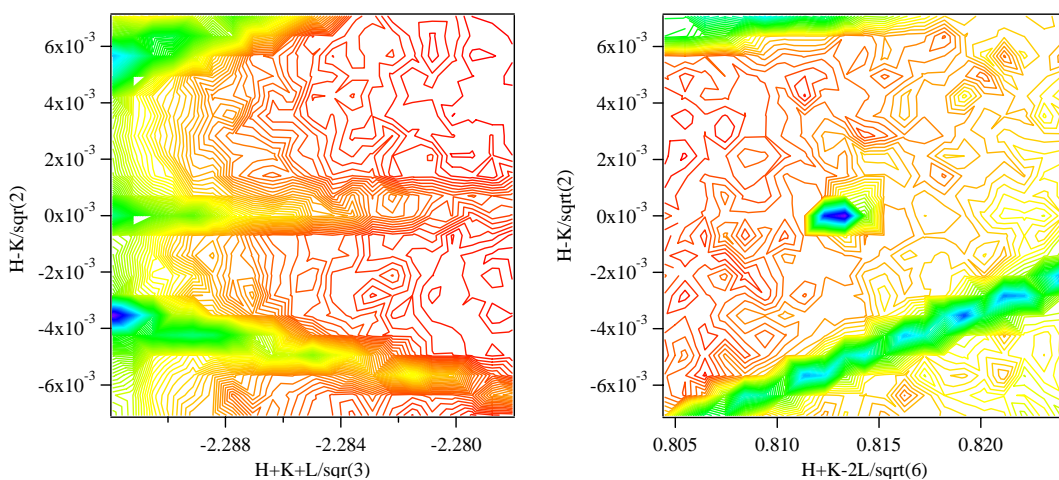
§ 2.3 (1,1,-2)面に面出しした試料における磁気散乱衛星反射の搜索

螺旋軸に垂直方向である(1,1,-2)面に面出しした試料を用い、無磁場下、最低温で測定を行った。この条件下で磁場印加は出来ないが、バックグラウンド強度が(3,3,2)面に面出しした試料よりもさらに小さく、無磁場下のため螺旋軸方向が磁場の影響を受けず $\langle 1,1,1 \rangle$ 方向に存在するメリットが存在する。本測定は、

- ・ (-1,-1,-2): 電荷散乱強度が強く、磁気衛星反射強度の非対称性が最も顕著に表れる散乱面
- ・ (1,1,-2): 電荷散乱強度が2番目に強いが、磁気衛星反射強度の非対称性の観測は不可
- ・ (2,0,1): 電荷散乱強度が最強で且つ低角の散乱のため、磁気散乱強度が最大

の周りに観測されるはずである磁気衛星反射の搜索を行ったが、いずれの散乱面周りにおいても、磁気衛星反射の観測には至らなかった。

例として、Fig.3 (a) に(-1,-1,-2)まわりの $\langle 1,1,1 \rangle$ - $\langle 1,-1,0 \rangle$ 平面内の逆格子マップを示す。 $\langle 1,1,1 \rangle$, $\langle 4,2,3 \rangle$ (つまり、 $\langle 3+1,3-1,3 \rangle$), $\langle 3,5,4 \rangle$ (つまり、 $\langle 4-1,4+1,4 \rangle$)方向にストリークが観測されたが、磁気衛星反射は観測されていない。但し、ストリーク強度が非常に弱いため、ストリークの存在が、磁気衛星反射強度の観測されなかった理由にはなり得ない。また、Fig.3 (b) に磁気衛星反射が期待される(-1+ , -1+ , -2+)まわりの $\langle 1,1,-2 \rangle$ - $\langle 1,-1,0 \rangle$ 平面内の逆格子マップを示す。 $\langle 4,2,3 \rangle$, $\langle 3,5,4 \rangle$ 方向に観測されたストリークが平面状に存在することが判明したものの、磁気衛星反射は観測されていない。



(a) $\langle 1,1,1 \rangle$ - $\langle 1,-1,0 \rangle$ 平面

(b) $\langle 1,1,-2 \rangle$ - $\langle 1,-1,0 \rangle$ 平面

Fig.3 (-1+ , -1+ , -2+)まわりの逆格子マップ

§3 考察

以上をふまえると、磁気衛星反射は $\langle 1,1,1 \rangle$ 方向に存在することは考えにくい。但し、結晶構造を考えると、DM ベクトルは $\langle 1,1,1 \rangle$ 方向であり、磁場以外の要因によって螺旋軸が $\langle 1,1,1 \rangle$ 方向からズれることは考えにくい。但し、中性子回折測定で得られた磁気散乱の位置が X 線磁気回折測定では、予想された位置から分裂した例もあるため、MnSi も $\langle 1,1,1 \rangle$ 方向を中心に等価な方向に分裂した可能性が考えられる。

中性子回折測定は、中性子の干渉力が非常に弱く、その散乱強度の弱さを補うため、縦方向の分解能を出来る限り落として測定を行う。その分解能の悪さが原因となって、磁気衛星反射の位置が間違っ理解されている可能性は十分高い。Fig.4 に偏極中性子散乱測定^[1]と X 線磁気回折測定を比較した逆格子マップを示す。

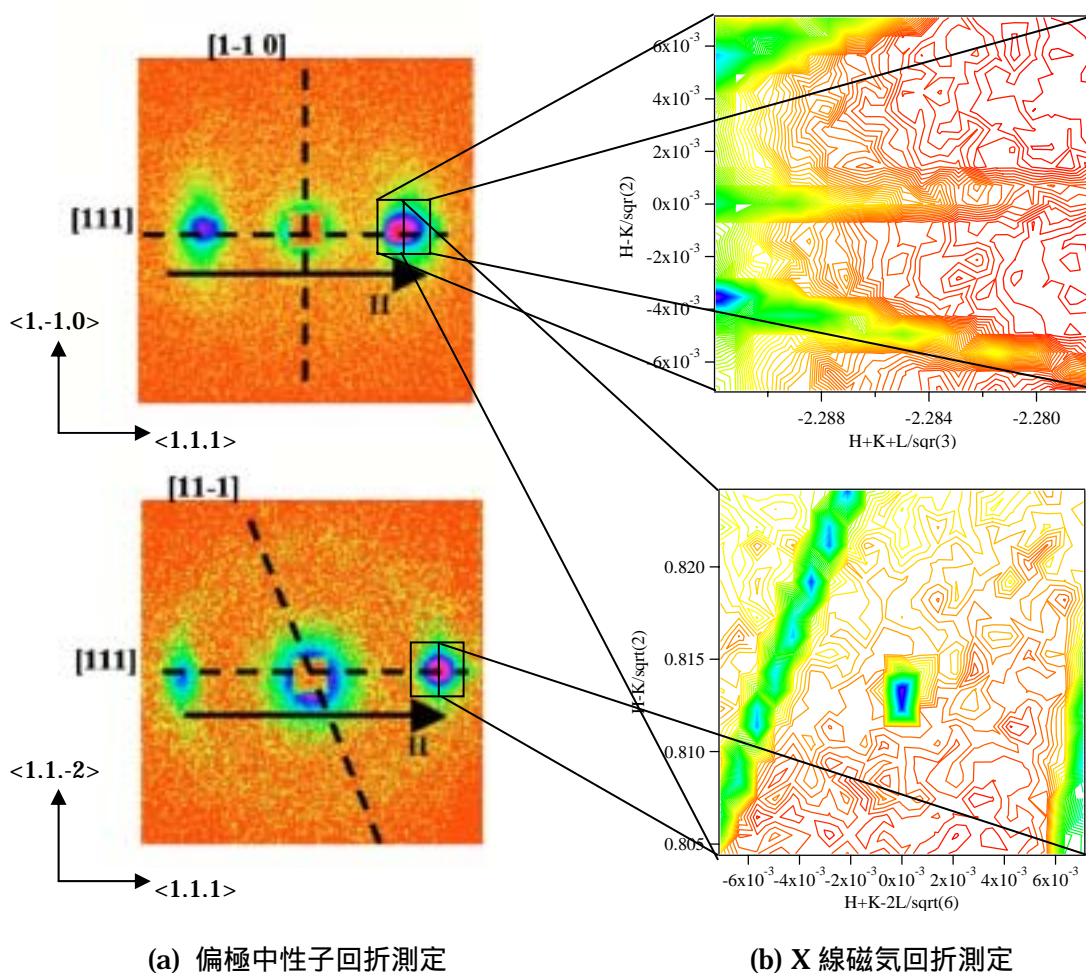


Fig.4 偏極中性子回折測定と X 線磁気回折測定の逆格子マップ

今回の測定では、中性子回折測定で考えられる磁気衛星反射の位置をほぼ網羅している。それでも磁気衛星反射が観測されないことは、磁気衛星反射が $\langle 1,1,1 \rangle$, $\langle 1,-1,0 \rangle$, $\langle 1,1,-2 \rangle$ の 3 つのベクトルが形成する平面上には存在せず、磁気衛星反射の観測される位置の探索

には縦方向の分解能を解決することが不可欠であることを意味する。

§5 まとめ

今回の測定で、MnSi の $\langle 1,1,1 \rangle$ 方向に存在すると考えられる磁気衛星反射の観測には至らなかった。しかし、これまでの問題点を解決した上での測定であり、磁気散乱の観測が出来なかったことが、磁気散乱強度が弱く、そのシグナルの観測を失敗したことを意味しない。最も考えられる可能性として、磁気散乱が $\langle 1,1,1 \rangle$ 方向から分裂したことが挙げられる。

Reference

[1] S. V. Grigriev *et al.*: Phys. Rev. B **73** 224440 (2006).