

論文要旨

キラル磁性体 RNi_3X_9 ($R = Dy, Yb, X = Ga, Al$) における らせん磁気秩序と異方性の競合

(Competition between helimagnetic order and magnetic anisotropy in
chiral magnets RNi_3X_9 ($R = Dy, Yb, X = Ga, Al$))

塚越 舜

【背景と目的】

キラリティとは、鏡に写した構造と元の構造が重なりあわない性質である。キラリティは本来構造の性質以上については言及されないが、Dzyaloshinsky–Moriya (DM) 相互作用を起点として結晶構造のキラリティが磁気秩序に反映されるように、スピン系との結びつきも存在する。DM 相互作用を起点とした磁気秩序の例として、らせん磁気秩序やキラルソリトン格子といったキラリティの縮退が解かれた構造が現れることが知られており、盛んに研究が行われている。しかしながら、DM 相互作用を起点としたキラルな磁気秩序を示す例は少なく、磁気以外にキラリティの影響を受けた秩序パラメータは未だに報告されていない。本研究の対象、 RNi_3X_9 は空間群 $R32$ に属するキラルな結晶構造をとり、 R には Sm – Lu の多様な希土類イオンを導入することができる。中でも、 $DyNi_3Ga_9$ 、 $YbNi_3Al_9$ は、それぞれ四極子秩序とキラルソリトン格子を発現することで注目されている。

$DyNi_3Ga_9$ は磁性イオンが Dy^{3+} ($S=5/2, L=5, J=15/2$) であり、大きな軌道角運動量 L 、全角運動量 J を持つ。この物質は磁化測定と中性子回折実験で、 $T_N=10$ K 直下で $\mathbf{q} \sim (0, 0, 0.45)$ の伝搬ベクトルをもつらせん磁気構造を形成することが示唆されている。一方で、超音波測定では C_{66} (c 面内の横波振動モード) が T_N に向かって強四極子秩序による巨大なソフト化を示す。らせん磁気秩序は c 面内に等方的な異方性であるのに対して、強四極子秩序は一軸異方性をもたらす、互いに背反する性質をもつ。磁化や超音波測定などで観測された逐次転移はこの相反する二つの相が入れ替わると考えられ、キラルらせん磁気秩序と四極子による異方性が競合する過程が見られる新しい系であると考えている。

$YbNi_3Al_9$ は磁性イオンが Yb^{3+} ($S=1/2, L=3, J=7/2$) であり、希土類元素の中では比較的軌道角運動量 L 、全角運動量 J が小さい。 $YbNi_3Al_9$ はゼロ磁場、低温でらせん磁気構造をとることが知られており、1 kG の磁場を印加するとメタ磁性転移を示す。Ni を Cu で 6 % 置換した $Yb(Ni_{0.94}Cu_{0.06})_3Al_9$ はゼロ磁場、低温でらせん磁気構造をとるが、0 – 10 kG にかけて反りあがるような特徴的な磁化過程を示す。この磁化過程はキラルソリトン格子として知られており、この反りあがる磁化過程は共鳴 X 線回折実験によってらせんがほどける様子として観測される。このらせんがほどける過程は Sine–Gordon の連続体近似のモデルによって説明されるが、 $YbNi_3Al_9$ のらせんの長さはおよそ 61 Å ほどの大きさしかなく、実際のらせん構造は離散的であるといえるが、離散的ならせん構造であっても Sine–Gordon の連続体近似のモデルが適用できることに興味を持たれている。キラルソリトン格子のピッチ角は交換相互作用、DM 相互作用の大きさによって、磁気モーメントの異方性は結晶場によって決まるが、それらは未だに実験的に観測されていない。交換相互作用と DM 相互作用の大きさを反映するスピン波の分散を計算するためには、結晶場ハミルトニアンによる基本的な波動関数が必要である。 $YbNi_3Al_9$ の磁化測定ではらせん磁性相では c 面内に異方性が生じるが、高磁場をかける、または温度を上げることによって c 軸方向が磁化容易軸となることがわかっている。この結果から結晶場ハミルトニアンを特定する試みが行われ、温度、磁場による容易軸の入れ替わりを再現するまでに至っているが、結晶場の直接的な観測は行われていない。

DyNi₃Ga₉, YbNi₃Al₉ は同じ結晶構造をとりながら, S, L, J の値はそれぞれ異なる. 上記で記述したような, キラル磁性体における交換相互作用, DM 相互作用, 四極子相互作用, 結晶場異方性が競合する問題を研究することで, 各種相互作用に関する新たな知見を得られると考える. 本研究ではそれぞれの相互作用の競合に重点をおいて, 次の実験を行った.

- 共鳴 X 線回折実験による DyNi₃Ga₉ の磁気構造の特定.
- X 線回折実験による DyNi₃Ga₉ の格子歪みの観測.
- 中性子非弾性散乱による YbNi₃Al₉ の結晶場パラメータの決定.

【結果と考察】

● DyNi₃Ga₉ のらせん磁気構造の観測

転移温度 $T_N = 10\text{K}$ 直下では格子不整合な伝搬ベクトル $\mathbf{q} = (0, 0, q_{\text{in}})$ ($q_{\text{in}} \sim 0.42$) をもつらせん磁気構造をとることが分かった. 伝搬ベクトルは温度が下がるにつれて, $q = 0.5$ へ近づく. $T'_N = 9\text{K}$ 以下では格子不整合なピークは弱くなり, $\mathbf{q} = (0, 0, 0.5), (0, 0, 1.5)$ の格子整合なピークが出現する. 格子不整合なピークと格子整合なピークで偏光依存性を測定し, 入射 X 線の π 偏光を楕円偏光, σ 偏光に変化させながら強度の測定した. $\Delta\theta_{\text{pr}} = -0.022$ で左円偏光 (LCP), $\Delta\theta_{\text{pr}} = 0.022$ では右円偏光 (RCP) になる. 格子不整合なピークでは RCP と LCP を入射したときの強度変化に非対称性が現れる. 格子整合なピークは非対称性が現れるものの, 格子不整合なピークほどピーク強度の増減は著しくない. この結果は格子不整合ならせん磁気構造では DM 相互作用によってヘリシティが一意的に決まっていたのに対し, 格子整合なピークでは DM 相互作用の影響が小さくなり, 両方のヘリシティが混ざることの意味する.

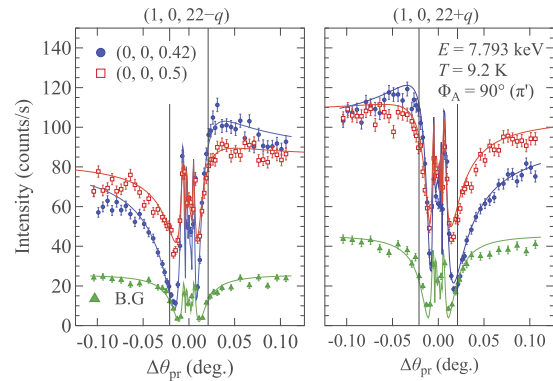


図 1: 移相子の角度を変化させたときの格子不整合, 格子整合なピークの強度変化.

● T_{sf} におけるスピントロップ

T'_N 以下では伝搬ベクトル $\mathbf{q} = (0, 0, 0)$ の傾角反強磁性相へ転移し, T'_N 以下では伝搬ベクトルは変化しない. 磁気ピークの磁場依存性を測定すると, 磁場が正の時と負の時の強度に差が生じる. この強度差は磁気モーメントが磁場で反転することを意味する. しかし, $T_{\text{sf}} = 5\text{K}$ を境に強度差の符号が入れ替わり, 温度で磁気モーメントがフロップしていることがわかった. フロップの要因は Zeeman エネルギーと異方性エネルギーの競合である. T_{sf} 以上では異方性エネルギーよりも Zeeman エネルギーの方が影響が強く, 磁気モーメントは磁場に対して垂直な成分をとろうとする. T_{sf} 以下では Zeeman エネルギーよりも異方性エネルギーの方が影響が大きくなるため, 磁気モーメントは磁場に対して平行な成分をとるようになる. この異方性エネルギーは四極子モーメントの大きさに依存しており, ピーク分裂の項で述べる四極子モーメントの成長と磁気モーメントとの結合の影響を受けていると考えている.

● (6, 0, 0) 反射のピーク分裂

(6, 0, 0) 反射の温度を変化させながら 2θ スキャンを行い、対称性が変化する様子を観測した。(6, 0, 0) の回折ピークは T_N 以下で少しずつ高角側にシフトしていき、 T'_N 以下で明確なピーク分裂が確認された。(6, 0, 0) のピーク分裂は空間群 $R32$ の三回軸が破れ、空間群 $C2$ に変化したことを意味している。図 2 に磁場中で回折ピークの強度の温度依存性を示す。メインピークである A ピークとサブピークの B ピーク強度が急激に抑制される。A ピークは T_N 以上のときの回折強度に戻っているのに対して、B ピークは 0 へ近づく。この結果は、強四極子秩序によって大小性が変化し、 T_{sf} 以下で四極子モーメントが成長しきると磁気モーメントと結合が始まり、磁場で格子のドメイン (四極子ドメイン) が選択されることを意味している。

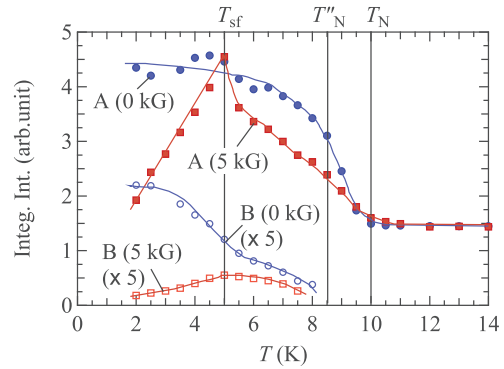


図 2: (6, 0, 0) 反射の回折強度の温度依存性。

● YbNi₃Al₉ の非弾性散乱スペクトル

YbNi₃Al₉ の非弾性散乱により、結晶場励起スペクトルの測定を行った。基底二重項の占有率が最も高い 10 K の測定で、二つの明瞭な非弾性スペクトルが観測された。この結果をもとに結晶場パラメータを決定し、基底二重項と第一励起二重項と $|\pm 7/2\rangle$ と $|\pm 5/2\rangle$ の線形結合で表現でき、 c 軸に対して垂直な方向が磁化容易軸となる。第二励起準位と第三励起準位は $|\pm 1/2\rangle$, $|\pm 3/2\rangle$ であり、磁化容易軸は c 軸方向となる。この結果は、らせん構造が c 軸に垂直な面内でモーメントが発生させていることと矛盾しない結果である。

【まとめ】

DyNi₃Ga₉ と YbNi₃Al₉ の実験結果から、全角運動量 J が異なる時、らせん磁性相で果たす役割を明らかにした。DyNi₃Ga₉ のように J が大きい時には、転移温度直下のみでらせん磁性相は許され、四極子モーメントと磁気モーメントとの結合が強くなると傾角反強磁性相に転移する。傾角反強磁性相においても、秩序構造へ及ぼす四極子モーメントと磁気モーメントの寄与も変化し、磁気モーメントのフロップや四極子ドメインの選択として現れる。YbNi₃Al₉ については中性子非弾性散乱によって結晶場準位と固有関数を決定し、らせん秩序相における磁気異方性を説明できる結果となった。

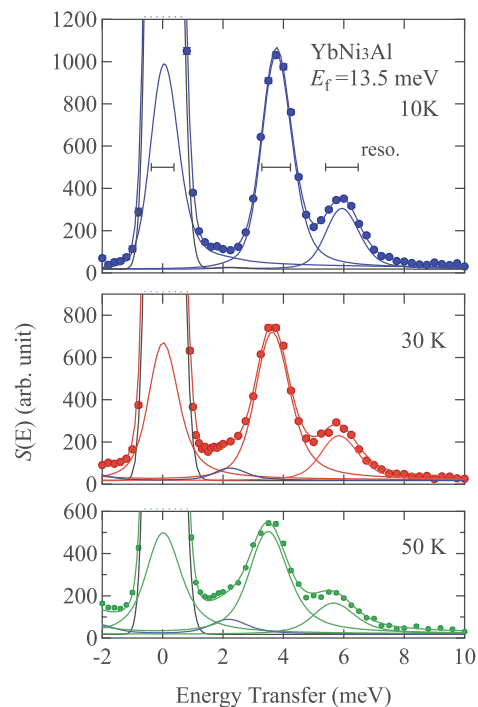


図 3: YbNi₃Al₉ の中性子非弾性散乱スペクトル。