

# $f$ 電子系キラル磁性体 $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$ における磁気ソリトン格子の形成

松村 武<sup>1</sup>, 道村 真司<sup>2</sup>, 稲見 俊哉<sup>3</sup>

<sup>1</sup> 広島大学大学院先端物質科学研究科 〒 739-8530 東広島市鏡山 1-3-1

<sup>2</sup> 埼玉大学大学院理工学研究科 〒 338-8570 さいたま市桜区下大久保 255

<sup>3</sup> 量子科学技術研究開発機構放射光科学研究センター 〒 679-5148 佐用郡佐用町光都 1-1-1

鏡映面も反転心ももたない結晶構造をもつ  $f$  電子系キラル磁性体  $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$  について、ゼロ磁場でのらせん磁気構造と、磁場中で形成される磁気ソリトン格子状態を共鳴 X 線回折によって観測した。右型と左型それぞれの結晶構造をもつ試料を用意し、円偏光ビームを使ってらせんのヘリシティ（巻き方）との関係を調べた結果、1対1の対応関係があることがわかり、確かにジャロシンスキー・守谷型の反対称相互作用が存在していることを示す。また、らせん磁気秩序の伝播ベクトル  $(0, 0, q)$  と垂直な方向に磁場をかけると、強磁性成分の発達とともにらせんがほどけて周期が長くなっていき、同時に、2倍高調波  $(0, 0, 2q)$  や 3倍高調波  $(0, 0, 3q)$  成分が発達してくる。これは、局所的ならせんのひねりが周期的に並んで磁気ソリトン格子が形成されることを示している。バルク試料の磁化過程から予想されていた  $f$  電子系初級のキラルソリトン格子の観測がいかになされたか、また、そこからわかってきた  $f$  電子系キラル磁性体の特徴について紹介する。

## 1. はじめに

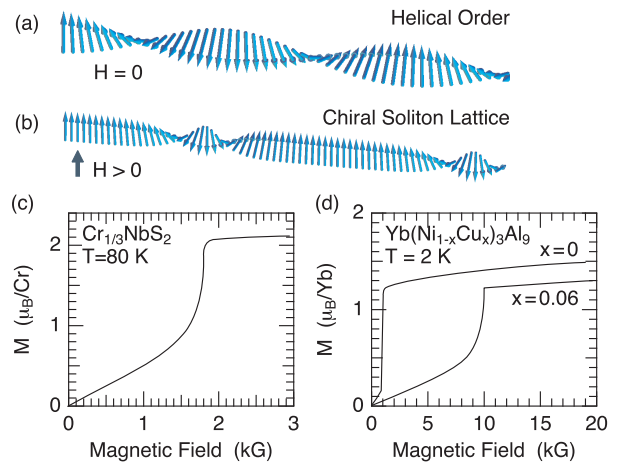
### 1.1 結晶のキラリティと磁性

物質の構造に反転中心も鏡映面もなく、エネルギー的に等価でありながら右手系と左手系の2種類が存在し得る物体をキラル (Chiral) であるという。生命や薬学の分野ではキラリティは極めて重要な役割を担っており、DNA やアミノ酸などの生命活動に直接的な影響を与えている。物性物理においても、酒石酸結晶の旋光性が左右の結晶形態で異なることをパスツールが発見して以来、物質のミクロな内部構造の違いがマクロな動的性質の違いになって現れることが認識され、キラリティは重要な概念となっている<sup>1)</sup>。磁性体では、近年、特にキラルな結晶構造において、系を構成する微小要素間の相互作用により、非自明な秩序構造がマクロスケールで出現する創発的なスピン秩序形成が注目されている。立方晶  $\text{MnSi}$  など B20 型結晶において渦巻き状の磁気秩序ユニットが六方格子を組むスキルミオン格子や<sup>2-4)</sup>、六方晶  $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$  における一軸性のらせん磁気構造で“ひねり” (ソリトン) が周期的に配列したキラルソリトン格子 (Chiral Soliton Lattice, CSL) の形成である<sup>5-7)</sup>。これらは、磁場でスピンを揃えようとする過程で創発的に生じる非自明な秩序構造である。Fig. 1(a), (b) に、ゼロ磁場でのらせん磁気秩序から磁場中で CSL が形成される様子を模式図で示す。結晶構造のキラリティが、右巻き左巻きどちらか一方のらせん磁性を安定化させており、それが磁場中で創発的な秩序構造を形成する要因となっている。スキルミオンやソリトンの数や運動を電場や磁場で制御できることから、スピントロニクス機能による新しい記憶・論理素子としての応用も期待されている。

これらの現象の起源にあるのが、対称性が低い結晶中でスピンや軌道の自由度が感じるねじれた相互作用、いわゆる Dzyaloshinskii-Moriya (DM) の反対称相互作用である<sup>9,10)</sup>。スピン間の相互作用は  $\mathbf{D}_{ij} \cdot (\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j)$  の反対称型で表され、スピンは互いに直角になろうとする。これが、スピ

ンを互いに揃えようとする強磁性や反強磁性交換相互作用  $J_{ij}\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j$  に加わることで、右巻きらせんと左巻きらせんのエネルギー縮退が解け、Fig. 1 (a) のように、一方の巻き方 (ヘリシティ) を持ったらせん磁気構造が安定化する。ここに磁場をかけると、Fig. 1 (b) のように、非線形な秩序構造が出現するのである。対称型の  $J_{ij}\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j$  だけによるらせん磁気構造 (吉森型) からは出てこない、結晶キラリティに守られた安定な秩序だからこそ出現する特殊な状態である。

CSL 形成がマクロな物性に及ぼす最も顕著な効果は、Fig. 1 (c) に示すような、強磁性状態に向かってそり上がるような磁化過程である。対称型相互作用の競合による吉森型のらせん磁気構造の場合、右巻きと左巻きのエネルギーが縮退し、スピントロップによるファン構造を経由して強磁性に移るため、このような磁化過程にはならない<sup>6,7)</sup>。



**Fig. 1.** (a) Helical magnetic order at zero field. (b) Chiral soliton lattice realized in magnetic fields applied perpendicular to the helical axis. (c) Magnetization curve of  $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ .<sup>8)</sup> (d) Magnetization curve of  $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$  for  $x=0$  and  $0.06$ .<sup>20)</sup>

## 1.2 本研究のねらいとその位置づけ

磁性研究のスペクトルは基礎から応用まで見渡すと非常に広く、放射光はその全領域に渡って利用されていると言っても過言ではない。本稿で紹介するのは、その中でも非常に基礎的な磁性物理であり、物質中の電子集団が引き起こす様々なタイプの相転移現象の一つである。我々の興味の視点は電子系の相転移と結晶構造がもつ対称性ととのあいだの密接な関係にある。結晶格子の対称性という制約条件によって電子系がどのように影響をうけ、物質ごとに様相が異なる多彩な相転移現象の背後にどのような物理的機構があるのかを探究することがテーマとなっている。

たとえば立方晶の磁性体のように対称性の高い物質では、スピン、軌道、およびそれらが複合化した多極子自由度が縮退するケースが多く、そのままと絶対零度でエントロピーをゼロにするという熱力学的要請に応えることができない。この場合の興味は縮退が解けるプロセスの多彩さであり、近藤効果、軌道秩序、多極子秩序、超伝導など、様々な電子自由度を巻き込んだ物理がある。

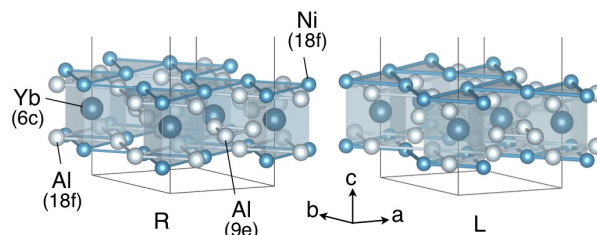
一方、対称性の観点でその対極にあるのがキラリティ磁性体であり、鏡映面も反転心も持たない低対称性に特徴がある。軌道自由度に関する縮退はすべて解け、残された自由度はスピンの向きだけであるように思われる。すると、特に目立った特徴もなさそうに見えるが、実際は運動のパターンが対称性で制限されることで、対称性が高い物質では見えなかった現象が見えてくることがある。本稿で紹介するキラリティ格子もその一つである<sup>11)</sup>。

## 1.3 キラリティの重要性と意義について

さて、本論に入る前に、そもそもキラリティとは何であるか、重要性や意義などについての説明がもう少し欲しいところである。通常はカントに始まり、パスツール、ケルビンと続く歴史の話から始めたり、素粒子物理学におけるキラリティとのつながりをもってきたりするのが定番のようだ。また、真のキラリティと偽のキラリティといった話も重要である(本稿で取り上げるらせん磁気構造は真のキラリティに属する)。しかし、一実験屋である筆者(TM)自身、こうした概念を正しく捉え切れていない面もあり、意味も含めて平易に記述する力量を持たない。これらについては既にいくつかの解説記事があることもあり<sup>12-14)</sup>、本稿の目的は我々が行った実験の紹介にあることを鑑みて、割愛させていただくことにする。

## 2. 研究の発端

$\text{YbNi}_3\text{Al}_9$  は空間群  $R32$  に属する三方晶構造の物質であり、研究当初は重い電子系 Yb 化合物の新物質探索の一環として、主に近藤効果を念頭にその物性が調べられていた<sup>17-19)</sup>。 $c$  面を磁化容易面とし、相転移温度 3.4 K で  $c$  軸方向の伝播ベクトル  $\mathbf{q} = (0, 0, 0.8)$  をもつらせん磁気秩序を起こすことが報告されている。この物質がキラリティな結晶構造をもった磁性体であることが再認識され、それが原因となってキラリティ格子が実現している可能性が指摘されたのは、Fig. 1(d) に示すように、Ni を Cu で置換した



**Fig. 2.** Crystal structure of  $\text{YbNi}_3\text{Al}_9$  with the space group  $R32$ .<sup>15)</sup> We call the structure with  $x=0.3332$ ,  $y=0.0056$ ,  $z=0.08517$  for the 18f site of Ni as right (R) and its mirror reflection as left (L) crystal. Only the  $\text{Yb}_2(6c)+\text{Al}_3(9e)+2\text{Ni}_3(18f)+2\text{Al}_3(18f)$  block layer at the bottom of the unit cell is shown. The unit cell is constructed by transforming this block by  $(2/3, 1/3, 1/3)$  and  $(1/3, 2/3, 2/3)$ . Other Al layers at the 6c and 9d sites are omitted. VESTA was used for drawing the figure.<sup>16)</sup>

$\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$  ( $x = 0.06$ ) での磁化過程が  $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$  で観測されていたそり上がるような磁化過程とそっくりであることが注目されてからである<sup>20)</sup>。

Fig. 2 に結晶構造の一部を示すように、右型と定義づけた結晶構造の鏡映をとった左型構造は、どのように回転させても右型と重ね合わせることができない。つまり、この結晶構造にはキラリティがある(右型も左型も空間群は  $R32$  であり、 $R32$  はキラリティな空間群とは呼ばない)。結晶は  $c$  軸が 3 回軸、 $a$  軸が 2 回軸になっているだけで、この他に対称操作はなく、対称性から、 $c$  軸方向に反対称 DM 相互作用ベクトル  $\mathbf{D}$  が存在するはずである。ここで、Fig. 1(c) と Fig. 1(d) の磁化過程の類似性に着目し、実際に  $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$  ではローレンツ顕微鏡観察によって CSL 状態が直接観測されていることを考えると<sup>5)</sup>、 $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$  でも CSL が実現しているのではないかと予想は、十分に筋が通ったものだろう。

もし、 $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$  でも実際に CSL が実現していることが立証されれば、 $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$  に続いて 2 例目、 $f$  電子系では初めての例となり、 $d$  電子系と  $f$  電子系の違い、 $f$  電子系ならではの特徴など、新しい研究領域が開けることが期待される。筆者(TM) はこれまで放射光を利用した共鳴 X 線回折法によって  $f$  電子系物質で起こる様々な磁場誘起秩序相を研究してきたが、この  $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$  の話のある研究会で聞いたとき、このテーマは我々がやってきた共鳴 X 線回折にぴったりかもしれないと思った。1.5  $\mu_B$  の磁気モーメントからの信号が見えるかどうかはやってみなければわからないが、微小試料での測定、高い空間分解能、偏光解析による秩序変数の同定など、はまれば中性子回折を凌駕する結果も期待できるのが共鳴 X 線回折である。偏光ビームを使って当たり前に行う磁場変化の測定も(X 線の偏光は磁場に影響されない)、固定磁場で偏極度を調整して行う偏極中性子回折では困難である。

## 3. 共鳴 X 線散乱・回折

物質中における X 線の散乱は電子と電磁波との相互作用、つまり、電荷やスピンを伴って運動している電子に、振動する電場と磁場が作用することで起こる。第 1 に、電荷に対して電場が直接作用することで起こるのが通常の



Thomson 散乱であり、この散乱振幅は電子密度分布をフーリエ変換した  $\rho(\mathbf{k})$  に比例する。 $\mathbf{k} = \mathbf{k}' - \mathbf{k}$  は X 線の散乱ベクトルである。結晶構造を調べる手段として一般に用いられているのがこの散乱項による回折である。第 2 に、電子のスピンや軌道磁気モーメントと電磁場との相互作用によって生じる磁気散乱がある。そして第 3 が、X 線のエネルギーが原子のエネルギー準位差 (吸収端) に近づいたときに起こる共鳴散乱である。内殻電子が外殻の非占有軌道に励起されて中間状態となり、再び初期状態に戻るときに同じエネルギーの X 線を放出することで散乱が起こる。波数ベクトル  $\mathbf{k}$ 、偏光ベクトル  $\boldsymbol{\varepsilon}$  の入射 X 線が、散乱後にそれぞれ  $\mathbf{k}'$ 、 $\boldsymbol{\varepsilon}'$  となる場合の共鳴散乱の散乱振幅  $F_{\boldsymbol{\varepsilon}\boldsymbol{\varepsilon}'}$  は次のように表される<sup>21)</sup>。

$$F_{\boldsymbol{\varepsilon}\boldsymbol{\varepsilon}'} \propto \sum_b \frac{\Delta_{ba}}{\hbar\omega} \frac{\langle a|\boldsymbol{\varepsilon}' \cdot \mathbf{J}^*(\mathbf{k}')|b\rangle\langle b|\boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{J}(\mathbf{k})|a\rangle}{\hbar\omega - \Delta_{ba} + i\Gamma/2} \quad (1)$$

ここで、 $\mathbf{J}(\mathbf{k}) = e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}(\mathbf{p} - i\hbar\mathbf{k} \times \mathbf{s})$  は電子の運動量とスピンによる演算子で、電子系に誘起される電気分極や磁気分極を通して初期状態  $|a\rangle$  から中間状態  $|b\rangle$  への遷移が起こることを表す。ただし、実際の遷移はほとんど電気的な分極を通して起こっている。(1) で重要なのは、エネルギーを  $\Delta_{ba}$  に合わせることで、中間状態  $|b\rangle$  を形成する不完全殻の電子軌道だけを選択的に観測できる点だ。磁気秩序や軌道秩序のように、特定の電子軌道の電子が秩序化した状態の観測に威力を発揮する。

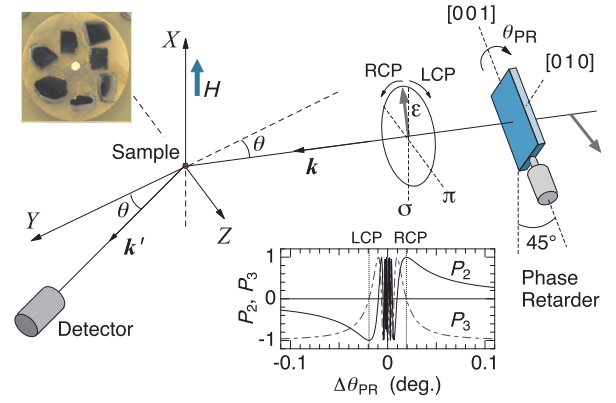
例えば、以下で述べる Yb の  $L_3$  吸収端を使った共鳴散乱では、Yb の  $2p_{3/2}$  軌道の電子を励起するプロセスを観測する。 $5d$  に励起される場合が  $E1$  遷移、 $4f$  に励起される場合が  $E2$  遷移である。磁性を担っているのは  $4f$  電子であるから、 $E1$  遷移では、交換相互作用によって  $5d$  軌道に生じたスピン分極を観測することで間接的に  $4f$  を観測することになる。

実験で観測するのは上記の散乱波が強め合って生じる回折ピークである。電子系が逆格子ベクトル  $\boldsymbol{\tau}$  で表される周期構造を持っているとき、Bragg 条件  $\boldsymbol{\tau} = \mathbf{k}' - \mathbf{k}$  を満たせば、その周期構造からの回折ピークが観測される。回折強度のエネルギー依存性や散乱前後での偏光状態の変化を調べ、 $F_{\sigma\sigma'}$ 、 $F_{\pi\sigma'}$ 、 $F_{\sigma\pi'}$ 、 $F_{\pi\pi'}$  の 4 つについて、できるだけ多くの情報を得て、モデル計算との比較から電子系に生じた秩序変数 (スピン、軌道、多極子) を同定し、その周期構造を調べるのが共鳴 X 線回折である。

## 4. キラルソリトン格子の観測

### 4.1 実験

低温磁場中共鳴 X 線回折実験は SPring-8 の BL22XU (実験ハッチ 3) で行った。ここに設置されている大型 2 軸回折計に 8 Tesla 縦磁場超伝導マグネットを搭載し、Al フラックス法で育成した  $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$  単結晶試料をセットする。試料スペースは液体ヘリウムで冷却され、最低温度 1.5 K で実験することができる。さらに、オプションとして  $^3\text{He}$  クライオスタットも利用することができ、ビーム照射条件下で最低温度約 0.9 K での共鳴散乱実験が可能で



**Fig. 3.** Scattering configuration of the experiment with a phase retarder system inserted in the incident beam. The inset figure shows the  $\Delta\theta_{\text{PR}} = \theta_{\text{PR}} - \theta_{\text{B}}$  dependence of the polarization state using the Stokes parameters  $P_2$  and  $P_3$ . The vertical dotted lines represent the positions of LCP and RCP states. The beam is depolarized in the region around  $\Delta\theta_{\text{PR}} \approx 0$ .

ある。実験配置図を Fig. 3 に示す。上流にはダイヤモンド移相子を利用した偏光制御システムが設置されており、円偏光を作ったり、直線偏光の向きを自在に変えたりすることができる。散乱後の偏光状態を調べる偏光解析システムも合わせ、低温磁場中での各種相転移現象を研究するシステムとしてはほぼフルスペックの環境を実現している。

試料は厚さ 0.5 mm 程度になるよう  $c$  面を鏡面研磨したものを、直径 8 mm の銅製台座表面にワニスで接着している。台座は回転ホルダーに取り付けられ、実験中に試料を回転させ、磁場方向や散乱面を変えることができる。また、Fig. 3 の写真に示すように、一回の実験で複数個の試料を同時にセットするのが最近のノウハウとなっており、ホルダーを抜き出して試料を交換する作業なしに、ビームを当てる位置を変えることで効率的な実験を行うようにしている。これはビームサイズが直径 1 mm 以下の X 線だからできることであり、1 回 4~5 日のビームタイムを 3~4 回で、 $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$  の 4 種類の Cu 濃度と左右両結晶について、各種の調整や試行錯誤、失敗も経ながら、まとまったデータを出すことができた大きな要因である。

図 3 に示すダイヤモンド移相子では、散乱面が 45 度傾いた 220 反射のブラッグ角  $\theta_{\text{B}}$  の回りで結晶を回転させることで透過ビームの  $\sigma$  偏光と  $\pi$  偏光の間に位相差を生じさせ、左右の円偏光 X 線ビームを作りだしている。位相差は  $1/\Delta\theta_{\text{PR}} = 1/(\theta_{\text{PR}} - \theta_{\text{B}})$  に比例し、ちょうど  $1/\Delta\theta_{\text{PR}} = \pm\pi/2$  にすると円偏光になる<sup>22)</sup>。入射光の偏光状態はストークスパラメータ  $\mathbf{P} = (P_1, P_2, P_3)$  を使って表し、右回り円偏光 (RCP) のとき  $P_2 = 1$ 、左回り円偏光 (LCP) のとき  $P_2 = -1$ 、 $\sigma$  直線偏光のとき  $P_3 = 1$ 、 $\pi$  直線偏光のとき  $P_3 = -1$  である。また、今の配置では 45 度直線偏光を表す  $P_1$  はゼロである。

少しやっかいなのが円偏光の定義だ。ここでは  $\boldsymbol{\varepsilon}_{\text{R}} = (\boldsymbol{\varepsilon}_{\sigma} + i\boldsymbol{\varepsilon}_{\pi})e^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r} - \omega t)}$  を右円偏光、 $\boldsymbol{\varepsilon}_{\text{L}} = (\boldsymbol{\varepsilon}_{\sigma} - i\boldsymbol{\varepsilon}_{\pi})e^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r} - \omega t)}$  を左円偏光と定義する。X 線構造解析の分野では  $e^{i(\omega t - \mathbf{k}\cdot\mathbf{r})}$  を使うようであるが、(1) のような量子力学的遷移も含めて考える

ときは、時間依存性の部分は  $e^{-i\omega t}$  であるほうがよい。図3では  $\Delta\theta_{PR}$  が正のときに RCP であるとされているが、これは空間群  $P6_122$  の結晶構造をもつ  $\text{CsCuCl}_3$  結晶において、禁制反射での共鳴散乱強度が RCP と LCP とで異なっており、その強度比が空間群だけで厳密に決まることを利用して確認した<sup>23)</sup>。

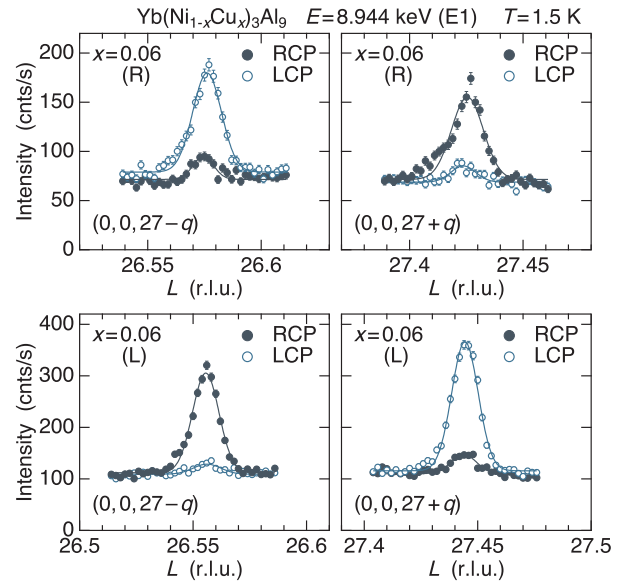
この実験では  $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$  結晶について右型と左型の両方を準備し、区別して実験を行っている。フラックス法で成長させた段階では左右両方の結晶が成長するのだが、放射光実験に使う試料を選別するとき、実験室で結晶構造を調べ (Bruker APEX-II), Flack パラメータから右型か左型かを同定したものを使っている。この作業を行うときに、当初は放射光実験に使う試料の端のほうをカッターで少し削り、そのかけらを構造解析にかけて左右の型を決めていたのだが、一度これで大きな間違いを犯したことがある。当然ながら放射光では試料の中心部分にビームを当てて実験をするのだが、円偏光ビームで磁気散乱を観測したところ、同じ右型の  $x=0$  と  $x=0.06$  の試料で磁気構造のらせんヘリシティが逆になっているという結果になった。ちょうど  $x=0.04$  でらせん波数の温度変化の仕方が逆転する結果を得ていた<sup>11)</sup>、それと同期しているのではないかと考え、これは大発見かと大きな期待をもった。しかし、確認のため実験室の X 線でも試料の中心部分にビームを当てて解析してみた結果、放射光でビームを当てた中心部分は左型であることが判明した。途中の濃度でらせんヘリシティが逆転するようなことはなかったのである。

放射光ビームラインで磁気散乱の観測を行うのと同じ条件下で結晶のキラリティを同定する方法として、 $(1, 1, 24)$  反射と  $(\bar{1}, \bar{1}, 24)$  反射の強度のエネルギー依存性を Yb 吸収端まわりで調べる方法がある。右型の  $(1, 1, 24)$  反射と左型の  $(\bar{1}, \bar{1}, 24)$  反射が同じエネルギー依存性を示すという対称性がある<sup>11)</sup>。

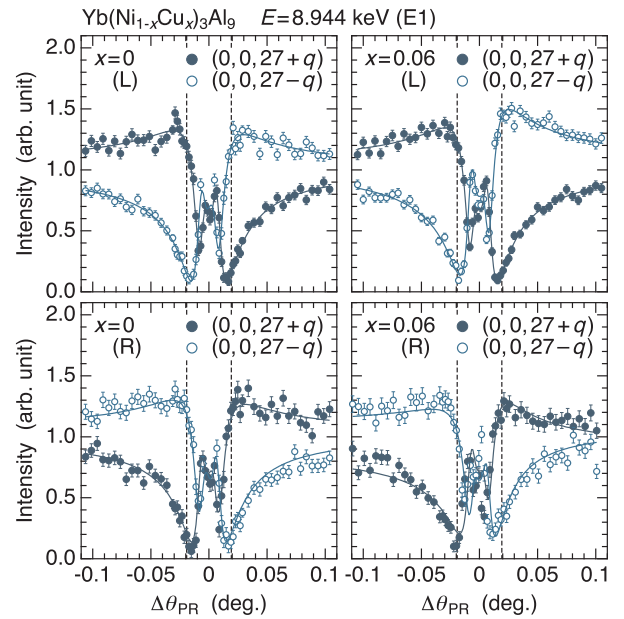
#### 4.2 結晶のキラリティとらせん磁気構造

まず、結晶のキラリティとらせんヘリシティの間に 1 対 1 の対応関係があることを示そう。Fig. 4 に示すのは、 $x=0.06$  の試料について、らせん磁気秩序の回折ピークが現れる  $(0, 0, 27 \pm q)$  ( $q \approx 0.44$ ) のまわりで逆格子空間の  $L$  軸上をスキャンした結果である。X 線のエネルギーはちょうど  $E1$  遷移に対応する共鳴エネルギーに合わせている。エネルギースペクトルは紙数の都合で割愛するので原論文を参照していただきたい<sup>11)</sup>。右型 (R) と左型 (L) のそれぞれの結晶について、右円偏光 (RCP) と左円偏光 (LCP) の X 線ビームを使って、基本反射  $(0, 0, 27)$  のプラス側とマイナス側両方のピークプロファイルを測定した結果、Fig. 4 に示すように非常にきれいな逆転関係が観測された。これはまさに、右結晶と左結晶とでは逆巻きのらせん磁気構造が実現していることを示している。

これは当然の結果であるようにも思われるが、そうなっているはずだと思っていることを実験できちんと確認した



**Fig. 4.** Reciprocal space scan along  $(0, 0, L)$  around the  $(0, 0, 27)$  fundamental peak for the  $x=0.06$  sample with right and left chirality using RCP and LCP X-rays. Solid lines are the fits with Gaussian functions.



**Fig. 5.** Incident polarization ( $\Delta\theta_{PR}$ ) dependence of the intensities at  $(0, 0, 27 \pm q)$  for  $x=0$  and  $x=0.06$  crystals with right and left handed chirality. Background has been subtracted. Solid lines are the calculations assuming the helical magnetic structure.

という意味では、大きな意義がある。これによって、この物質のらせん磁気秩序に確かに DM 型の反対称相互作用が寄与していることが示されたと言える。

ほぼ同じ意味の測定ではあるが、せっかくの機会なので Fig. 5 のようなデータも紹介しておこう。これは散乱ベクトルを Fig. 4 のピークトップに固定した状態で  $\Delta\theta_{PR}$  を変化させたときの強度変化である。入射 X 線の偏光状態が Fig. 3 の内挿図に示すように徐々に変化しており、 $\Delta\theta_{PR}$  が大きいところでの  $\pi$  偏光から、次第に円偏光成分が混じっ

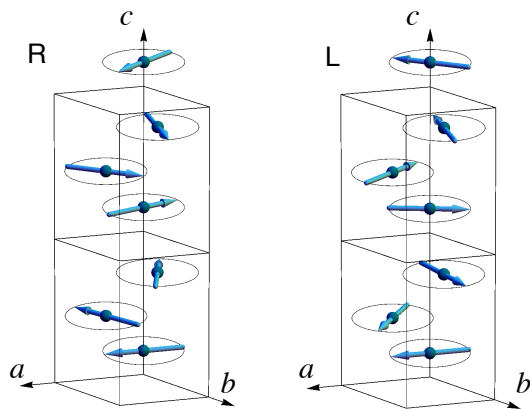


Fig. 6. Magnetic structure of  $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$  for  $x=0.06$ . Only the moments on the Yb-1 sites are shown.

た楕円偏光，点線で示される位置での円偏光を経て， $\sigma$  偏光を通して  $\Delta\theta_{\text{PR}} = 0$  でヘリシティが逆転し，逆回りの円偏光，楕円偏光を経て， $\pi$  偏光へと移る過程での強度変化が測定されている。このデータは単に  $P_2$  と  $P_3$  の比だけで決まるものではなく，強度の非対称性の原因となる  $F_{\pi\sigma'}$  と  $F_{\pi\pi'}$  の比など，散乱過程に依存した情報も含まれており，計算とよく一致しているという結果は，Fig. 4 のような一点だけの強度測定よりも多くの情報を説明できていることを示している。こうして得られた左右両結晶でのらせん磁気秩序の様子を Fig. 6 に示す。

#### 4.3 磁場によるキラルソリトン格子の発達

本研究の目的は磁場中で誘起されると予想されているキラルソリトン格子の観測にある。これは単一の波数  $q$  で表されるらせん構造に対する変調として現れるので， $q$  の2倍波や3倍波の信号として現れると期待される。Fig. 7 に示すのは， $x = 0.06$  の左結晶について  $(0, 0, 21 - q)$  および  $(0, 0, 21 - 2q)$  でのピークプロファイルを変えていきながら測定した結果である。X 線エネルギーは  $E2(2p \leftrightarrow 4f)$  共鳴に対応する  $8.934 \text{ keV}$  としている。ここでは  $E2$  のほうが  $E1$  よりもバックグラウンドが低く，S/N 比が高かったため弱い信号を精度よく測定するため  $E2$  を選択した。

一目瞭然であるが，基本波の  $(0, 0, 21 - q)$  ピークは磁場を強くすると  $\Gamma$  点である  $(0, 0, 21)$  へ近づいていく，つまり，らせん周期が徐々に長くなる。同時に，強度が徐々に弱くなっていく。一方，2倍波の  $(0, 0, 21 - 2q)$  ピークは，ゼロ磁場では強度がゼロであるが，磁場をかけていくと徐々に強度が増大していく。同様な測定を他の Cu 濃度の試料についても行い，波数  $q$  とピーク強度の磁場変化を図にしたのが Fig. 8 である。この結果は結晶の左右型で変わらない。 $x = 0$  の試料については，わずか  $1 \text{ kG}$  の磁場で強磁性相に転移してしまうため，CSL が観測可能なほどに発達しなかったものと考えられる。 $x = 0.02$  の試料でも  $2q$  ピークを観測したのは  $3 \text{ kG}$  の1点だけである。

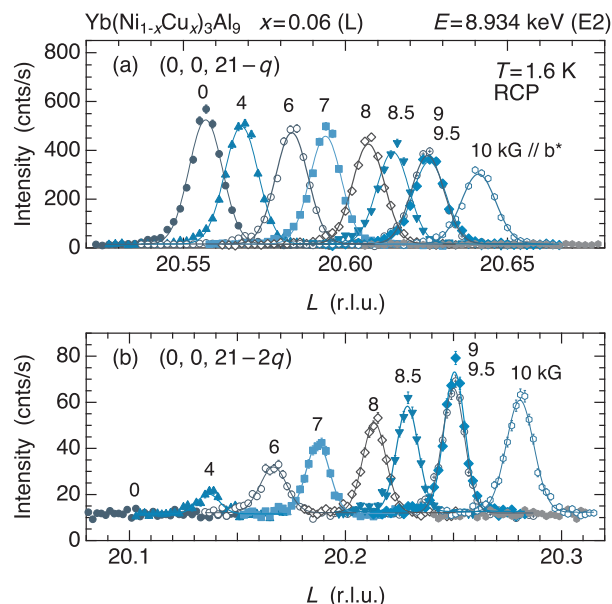


Fig. 7. Magnetic field dependence of the peak profile for  $x=0.06$  measured with the RCP photon at the  $E2$  resonance energy. (a) First harmonic peak at  $(0, 0, 21 - q)$ . (b) Second harmonic peak at  $(0, 0, 21 - 2q)$ . Field is applied perpendicular to the  $c$  axis ( $\parallel b^*$ ).

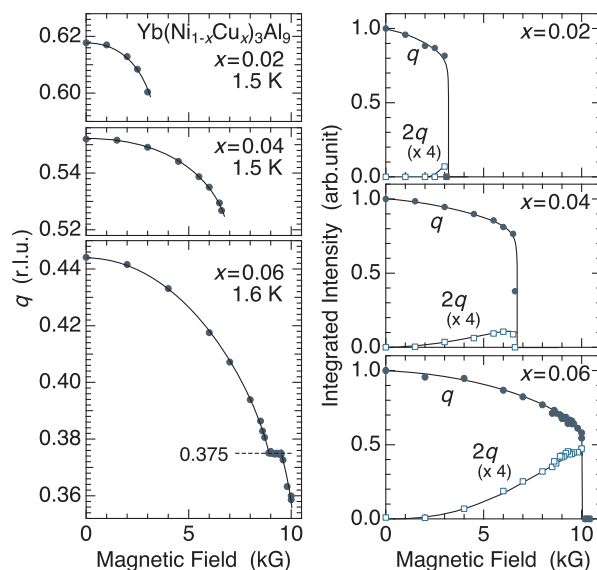
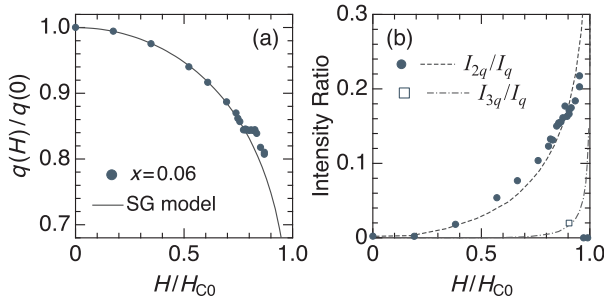


Fig. 8. Magnetic field dependence of the  $q$  values and the integrated intensities.

3倍波も観測されている<sup>11)</sup>。CSLの特徴の一つは，非線形な効果であるため，2倍，3倍，4倍...と，すべての倍数の高調波が観測される点である。既に，文献6,7では中性子回折でCSLを観測した場合について，ピークプロファイルや強度の磁場変化がサイン・ゴールドンモデルに基づいて計算されているが，Fig. 8 に示した結果は計算結果を驚くほどよく再現している。この物質で確かにCSLが実現していると言っても間違いはないであろう。

注目すべきは， $x = 0.06$  の  $9 \text{ kG}$  付近でみられた格子整合波数  $3/8$  へのロックインである。わずかな磁場領域では





**Fig. 9.** (a) Comparison of the experimental data of  $q(H)/q(0)$  for  $x = 0.06$  with the  $L_0/L_{\text{CSL}}$  curve obtained from the chiral sine-Gordon (SG) model.<sup>6,7)</sup>  $\mu_0 H_{C0}$  is set to be 11.5 kG. (b) Comparison of the experimentally obtained intensity ratios of  $I_{2q}/I_q$  (filled circles) and  $I_{3q}/I_q$  (open square) with the calculated ratio for the sine-Gordon model, using  $\mu_0 H_{C0}=10.5$  kG.

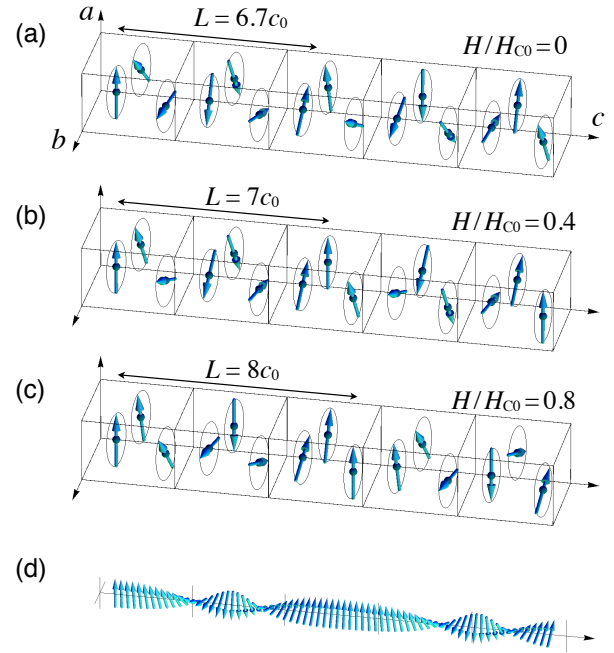
あるが、 $q=0.375$  という波数にぴったりと張り付いたまま動かない領域が存在する。これは実をいうと、滑らかなきれいなデータをとろうと何度か磁場変化の測定を繰り返しているうちに存在に気がついたものであり、当初は全く想像していなかった。転移磁場の 10 kG 直前は点を多めにとってきれいに見せようと、0.5 kG きざみで測定していたのだが、なぜか、いつも 9 kG あたりで点がずれて滑らかな曲線になってくれない。放射光実験は非常に精密なので、様々な磁場や温度履歴を経ると、同じ測定を繰り返しても、試料位置とビームとの微妙な位置関係が変わったりして、きれいにつながらないことがある。この測定でもそのように何らかの外的要因が働いたのだと思っていた。しかし、波数  $q$  をよく見ると 0.375 という、何か意味ありげなきれいな数字になっているのではないか。連続してなめらかな曲線になるという先入観で測定をしていたため、波数の数値にまで目が向いていなかったのだ。セレンディピティは大事である<sup>24)</sup>。Fig. 8 で 9 kG 付近に点数が多いのはこれに気がついた後、詳しく測定しようと磁場の上げ過程と下げ過程と入念に測定した結果である。

## 5. 考察

### 5.1 サイン・ゴルドン理論

CSL 状態の理論的研究はサイン・ゴルドン (Sine-Gordon, SG) 方程式を基礎にして行われてきた。実際、 $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$  に対しては SG モデルがよく適用でき、そり上がるような磁化過程や、らせん周期の磁場変化などがよく説明できる<sup>6,7)</sup>。SG モデルはスピン配列を連続変数として扱う連続体モデルである。これが  $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$  に対してうまく適用できるのは、 $c$  軸方向に伝播するらせん磁気秩序の周期  $L_0$  ( $\sim 480$  Å) が Cr のレイヤー間距離  $c_0 = 12.1$  Å と比べてずっと長いので、連続体近似が当てはまるからだと考えられる。それに対して  $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$  では、最も長いらせん周期でも  $x = 0.06$  の  $L_0 = 61$  Å であり、これは  $c_0 = 9.1$  Å ( $= c/3$ ) のたった 6.7 倍にすぎない。Fig. 6 のらせんはどう見ても離散的であり、連続体モデルを当てはめてもよいとは思われない。とはいえ、比較してみる価値はある。

Fig. 9 は  $x = 0.06$  での測定結果について、磁場に対する



**Fig. 10.** (a)–(c) Magnetic structures of  $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$  for  $x=0.06$  ( $L$ ) in magnetic fields expected from the chiral sine-Gordon model. Only the moments on Yb-1 sites are shown. (a) Helimagnetic ordered state at zero field with  $q=0.445$  and the helical pitch of  $L=6.7c_0$ . The same as Fig. 6. (b) CSL state for  $H/H_{C0}=0.4$ , corresponding to  $q=3/7$  and  $L=7c_0$  at around 5 kG. (c) CSL state for  $H/H_{C0}=0.8$ , corresponding to  $q=3/8$  and  $L=8c_0$  between 9.0 and 9.5 kG. (d) CSL state for continuous one-dimensional spin model corresponding to (c),  $H/H_{C0}=0.8$ .

波数の相対変化と、基本波に対する 2 倍波と 3 倍波の相対強度の変化をプロットし、SG モデルの計算と比較したものである。合わせるために調節しているのは臨界磁場  $H_{C0}$  だけであるから、理論との一致は非常によいと言える。ただし、実験では  $H/H_{C0} \sim 0.85$  で 1 次転移を起こして強磁性へ転移してしまうが、理論では  $q = 0$  の強磁性状態まで連続的に変化する。この点は合わない。一方、 $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$  では強磁性になる手前は  $H/H_{C0} \sim 0.97$  程度まで CSL 状態が維持される。この違いも短周期と長周期の違いによるものだろうか。また、らせんの周期を結晶の周期構造に合わせて固定化するロックイン現象は SG モデルでは当然ながら出てこない。そもそも、連続体モデルである SG モデルがなぜ短周期系である  $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$  にこれほどまで適用できてしまうのか疑問である。

理論の適用可能性の問題はさておき、観測結果を説明できているということは事実である。そこで、Fig. 10(a)–(c) に SG モデルを基に描いた  $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$  ( $x = 0.06$ ) の磁場中での磁気構造を示す。Fig. 10(c) は  $q = 3/8$  でロックインしたときの様子であり、ちょうど 8 層進んだところで位相が  $2\pi$  進む状況である。実際、この構造を基にして  $2q$  ピークの  $\Delta\theta_{\text{PR}}$  依存性を計算してみると、測定結果とよく一致するので、Fig. 10(c) は実際の様子をよく描写していると考えられる<sup>11)</sup>。8 層で  $2\pi$  があるなら、Fig. 10(b) のような 7 層で  $2\pi$  の構造があってもよいはずで、 $q = 3/7 = 0.4286$

でロックインがあってもよいと思われるが、Fig. 8の結果をみると、5 kG 付近に期待される  $q = 3/7$  のロックは起こっていないようだ。 $q = 3/8$  の磁場のほうが  $q = 3/7$  の磁場よりも CSL 構造自体が発達していることから、このロックイン現象は CSL 構造と深く関係していると思われる。

Fig. 10(c) を見ても離散的すぎてどこが CSL になっているのかわかりにくい。そこで、これを連続スピンモデルに置き換えて描画したのが Fig. 10(d) である。なぜ、SG モデルが当てはまるのかという疑問に対するやや飛躍した見方かもしれないが、(d) の図は伝導電子の様子を表していて、これが各 Yb サイトで交換相互作用することによって、Yb サイトは離散的でありながらも、連続体モデルが当てはまるような振る舞いを示す結果になっているのかもしれない。

## 5.2 交換相互作用と DM 相互作用

$\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$  のらせん磁気秩序と CSL 形成はどのような相互作用の結果生じているのだろうか。長周期のらせん秩序をもつ  $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$  では次のようなハミルトニアンで基本的な部分は理解可能である。

$$\mathcal{H} = -J_1 \sum_i \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_{i+1} - D \cdot \sum_i \mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_{i+1} - \sum_i \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{H}, \quad (2)$$

強磁性的な最近接相互作用  $J_1$  に弱い  $D$  が加わることで、隣接する層のスピンがねじれる効果を出している。これが 1 軸性らせん磁気および CSL の基本モデルである。 $\mathbf{S}_i$  は磁気異方性によって  $xy$  面内にあり、 $D$  は  $z$  軸方向を向き、磁場  $\mathbf{H}$  は  $xy$  面内に向けられる。 $H = 0$  のとき、波数  $q$  でのらせん秩序のエネルギーは、層間距離を  $c_0$  とすると、 $E = -2S^2(J_1 \cos qc_0 + D \sin qc_0)$  で表されるので、エネルギーが極小をとる波数は  $q_0 = c_0^{-1} \arctan(D/J_1)$  で与えられる。しかし、この考え方を  $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$  にそのまま適用すると、 $x = 0.06, 0.04, 0.02$  に対する  $q_0 = 0.42, 0.54, 0.63$  を得るには  $D/J_1$  はそれぞれ 1.2, 2.1, 3.9 という異常に大きな値になってしまい、とても正しいとは思えない。しかも、 $x = 0$  での  $q_0 = 0.82$  では、隣接層のスピンがなす角度は  $96^\circ$  であり、このモデルでは根本的に説明不可能である。

このように大きな  $q_0$  を説明するためには、らせん秩序自体はより長距離の相互作用まで含んだ、吉森型の競合作用によってもたらされていると考える必要があるだろう。強磁性的な  $J_1$ 、反強磁性的な  $J_2$ 、さらに長距離の相互作用によって、 $\chi(q)$  が最大値をとる  $q_0$  でらせん秩序が生じていると考えられる。長距離相互作用の起源は伝導電子を媒介とする RKKY 相互作用である。例えば  $J_1$  と  $J_2$  だけを考えると、波数  $q$  でのらせん秩序のエネルギーは、 $E = -2S^2(J_1 \cos qc_0 + J_2 \cos 2qc_0)$  となり、エネルギーが極小をとる波数は  $q_0 = c_0^{-1} \arccos(-J_1/4J_2)$  で与えられる。ここに DM 相互作用によるエネルギー  $-2S^2 D \sin qc_0$  が加わることで、 $\pm q_0$  でのエネルギー縮退が解ける。

ところが、 $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$  系はそう単純には理解できない。重要な特徴の一つに、Cu 濃度による転移温度  $T_N$

と臨界磁場  $H_C$  の変化がある。 $x = 0.06$  での  $T_N = 6.5$  K は  $x = 0$  での約 2 倍であるのに対して、 $H_C = 10$  kG は 1 kG の 10 倍であり、これをどう理解するかが問題である。Cu 濃度が増すにつれてらせんの波数は小さく（周期は長く）なっていき、つまり、強磁性へと近づいていく。すると、単純には  $H_C$  は小さくなっていくと考えられるが、実際は  $T_N$  の 5 倍の上昇率で大きくなる。 $T_N$  を決めている主要因は同一面内での相互作用と考えられ<sup>25)</sup>、 $x = 0$  では強磁性的であるが、Cu 濃度が高くなるとこれが反強磁性的になっていくのかもしれない。実は、同一面内での Yb 磁気モーメントの位相関係がどうなっているのかは、 $x = 0$  の場合を除き、これまでの実験ではまだ観測できていない（だから、Fig. 6 や Fig. 10(a-c) には 1 つの Yb サイトの矢印しか描かれていない）。また、基本となる波数が  $J_1$  と  $J_2$  の競合で決まっているとすると、 $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$  のように波数だけから  $D/J_1$  の比を決めることができず、 $D$  の大きさを知るには別の情報が必要である。 $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$  では CSL の  $H_C$  を SG モデルの理論式と比較することで  $J_1$  の値が見積もられたが<sup>25)</sup>、 $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$  では  $J_1$  と  $J_2$  の競合らせんに DM が働いて CSL が形成されており、SG モデルの  $H_C$  をそのまま使うことはできない。このように、 $f$  電子系初のキララらせん CSL が観測されたことは事実であるが、 $f$  電子系特有の相互作用も考慮して全体像が明らかになるまでには、もう少し時間がかかりそうである。

## 6. 最近の進展

### 6.1 $\text{YbNi}_3\text{Al}_9$ での CSL

我々の研究では、 $x = 0$  の  $\text{YbNi}_3\text{Al}_9$  では CSL を観測することはできなかった。その原因は CSL が発達する前にわずか 1 kG で強磁性に転移してしまったためだと考えている。臨界磁場 3 kG の  $x = 0.02$  では、ぎりぎり 1 点だけではあるが 2 倍波がちゃんと見えている。では、 $x = 0$  の  $\text{YbNi}_3\text{Al}_9$  では CSL はないのかというと、最近の  $\mu\text{m}$  サイズの微細試料を使った磁気抵抗測定で、不連続な多段変化が観測されており、ソリトン数の変化を捉えたものと解釈されている<sup>26)</sup>。ソリトンは本来 1 個 2 個と数えられるものであり、マクロな試料ではほとんど連続的に見えていた磁気抵抗の変化が、マイクロサンプルを使うことで飛び飛びの変化が見えてきたというわけである。

$\text{YbNi}_3\text{Al}_9$  の磁気抵抗には、ヒステリシスがほとんどみられないという特徴がある。磁場の上げ過程と下げ過程で、ほとんど同じ磁場で磁気抵抗が不連続変化を示す。この点は大きなヒステリシスがみられる  $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$  とは異なっている。 $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$  では既に磁気抵抗の不連続変化と CSL との間にある強い相関を示す多くの実験結果があり、その関係は確かなものになっている。 $\text{YbNi}_3\text{Al}_9$  の磁気抵抗効果でも、Cu で置換された試料でどのような磁気抵抗効果が観測されるのか、さらなる研究が進むことで  $d$  電子系と  $f$  電子系の違いがより鮮明になり、理解が深まるものと期待される。

## 6.2 格子整合波数へのロックイン

SGモデルでは出てこない、格子整合な波数  $q = 3/8$  へのロックイン現象については、伝導電子系との結合を考えた理論が提案されている<sup>27)</sup>。(2)の第1項をより具体化し、局在  $f$  電子と伝導電子との交換相互作用、および伝導電子の運動エネルギーを考慮することで伝導電子系がハミルトニアンに組み込まれる。この考え方の基本はフェルミ面のネスティングである。系のらせん周期を表す波数がフェルミ波数  $k_F$  の2倍と合致したとき、フェルミ面上にギャップができ、伝導電子系は安定化する。通常のCSLであれば、外部磁場の変化に応じてらせん秩序の波数も連続変化するのだが、ネスティング条件が満たされている場合は、 $2k_F$  との一致を崩してしまうよりは、らせんの波数を保持して  $2k_F$  との一致を維持したほうが伝導電子系の運動エネルギーが低い状態を保てる。これが伝導電子系が関与したロックインの機構である。もし、結晶格子との結合による磁気異方性によって格子整合な波数へのロックインが起こるのであれば、7層で  $2\pi$  に相当する磁場においてもロックインがおこってしかるべきであろう。しかし、Fig. 8を見る限り、そのような現象は起こっていないように見える。実験的には、磁気抵抗の測定でロックイン磁場領域での電気抵抗の増大など、マクロ物性での異常が確認できればすばらしい。

## 6.3 CSL相への転移における磁化と比熱

最低温度での磁化過程でそり上がるような形になるのがCSL形成の特徴であるが、転移温度近傍での比熱や磁化にも特徴がある。 $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$  では既に詳細な磁化測定がなされており、カस्प型の鋭い磁化の温度変化が観測されている<sup>7)</sup>。これはSGモデルの予想とよく一致する。 $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$  でも磁化の温度変化に同様なカस्प型の異常が観測されている。さらに特徴的な現象として、CSL相への転移における比熱の鋭いピークがある<sup>28)</sup>。 $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$  ではNiをCuで置換しているため、結晶にある程度の乱れが導入されている。そのためか、ゼロ磁場でのらせん磁気秩序における比熱のピークは、 $\text{YbNi}_3\text{Al}_9$  での鋭いピークに比べるとずっと鈍っている。ところが、CSLが形成される8~9 kGでの比熱では、ベースとなるらせん秩序を反映したブロードな比熱ピークに加えて、CSL形成に伴う鋭い比熱のピークが観測される。この事実が示唆するのは、CSLは結晶のキラリティによって守られたらせんの位相秩序であり、少々の乱れには鈍感で、安定な存在であるということだ。

## 6.4 $\text{YbNi}_3\text{Ga}_9$ での高圧下磁気秩序

$\text{YbNi}_3\text{Al}_9$  と同じ結晶構造の物質に  $\text{YbNi}_3\text{Ga}_9$  があるが、こちらはYbの4*f*電子が伝導電子と強く混成して、非磁性の  $\text{Yb}^{2+}$  ( $4f^{14}$ )成分が大きくなっており、常圧では磁気秩序を起こさない。しかし、非磁性Yb化合物の一般傾向として、圧力をかけると*f*電子数が1個少ない  $\text{Yb}^{3+}$  ( $4f^{13}$ )状態が安定化し、磁気秩序が現れる。 $\text{YbNi}_3\text{Ga}_9$  では、非磁性基底状態から磁気秩序が現れる臨界圧力は9 GPaであ

る。最近、梅尾らは  $\text{YbNi}_3\text{Ga}_9$  の比熱を12 GPaという高圧下まで測定し、9 GPa以上の領域で  $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$  でのCSL形成に伴う鋭い比熱ピークと非常によく似た比熱異常を観測することに成功した<sup>29)</sup>。この比熱異常もキラル磁性由来のCSLのような特殊な秩序形成を捉えたものではないかと考えられる。バルク測定である以上、直接観測で実証されたわけではないが、状況から見ても信憑性は高いように思われる。10 GPaという高圧下でX線や中性子によってCSLを実証することは困難を極めるであろうが、 $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$  と同様な状況が高圧下の  $\text{YbNi}_3\text{Ga}_9$  でも実現しているとすれば、現象の普遍性を示すものとなり、実証されればその意義は大きい。

## 6.5 新規 $f$ 電子系キラル磁性体

キラル磁性体におけるらせん磁気秩序をベースに、磁場中で誘起される創発的秩序構造の例としてスキルミオン相を最初に挙げた。最近、新しい*f*電子系キラル磁性体においても類似の相が見つかり、注目を浴びている<sup>30,31)</sup>。 $\text{EuPtSi}$  という物質で、空間群は  $\text{MnSi}$  などと同じ立方晶  $P2_13$  である。 $\text{MnSi}$  等で観測されているスキルミオン相と非常によく似た磁気相図をもち、異常ホール効果が観測され、ゼロ磁場ではらせん磁気構造が存在している。磁場誘起スキルミオン相の研究は現在も進行中であるが、その特徴は本稿で紹介した  $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$  系のCSLと同様、短周期であることだ。ここが長周期で連続体モデルが成り立つ*d*電子系と全く異なっている。ミクロスケールでは異なっているものの、マクロな現象はそっくりである。何がこの普遍性をもたらしめているのだろうか。

## 7. おわりに

放射光を利用した極低温磁場中共鳴X線回折により、キラル磁性体  $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$  で存在が予想されていた磁場中でのキラルソリトン格子の形成を観測した。円偏光を活用した測定により、ゼロ磁場でのらせん磁気秩序では、右結晶と左結晶とで逆のらせんになっていることを示した。これは、ジャロシンスキー・守谷型の反対称相互作用が働くことでヘリシティ(巻き方)の縮退が解けていることを示す。また、らせん軸に垂直な方向に磁場をかけると、2倍、3倍の高調波成分が磁場とともに発達する。これは、らせんが次第にほどけて強磁性に移る過程で、ひねりが周期的に並んだキラルソリトン格子が形成される様子を捉えたものである。そのときの波数と強度の磁場変化は、サイン・ゴルドンモデルによる計算と驚くべき一致を示す。 $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$  を筆頭例とする*d*電子系と大きく異なるのはらせん周期がほぼ1桁短いことである。それにもかかわらず、連続体モデルであるサイン・ゴルドンモデルが適用できるのは不思議であり、今後の解明が期待される。その他にも、格子整合な波数へのロックイン現象が観測され、伝導電子との結合が寄与しているのではないかと考察が進められている。また、強磁性にDM相互作用が働くことで理解される  $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$  とは異なり、 $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$  は競合型の反強磁性相互作用で生じたらせん磁気秩序にDM



相互作用が働くと考えられ、全貌の理解はまだ先である。

$\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$  の発見を機に、他の  $f$  電子系キラル磁性体研究も進み出した。最近の大きな発見は  $\text{EuPtSi}$  におけるスキルミオン相であり、やはりらせん周期が短いのが特徴である。 $\text{YbNi}_3\text{Al}_9$  と同型の  $\text{DyNi}_3\text{Ga}_9$  では、電気四極子秩序が存在する<sup>32,33</sup>。電気四極子のらせん秩序もあるのかどうか、興味が持たれている。結晶場による強い異方性が働かなければ、ゲーテが述べているように、自然はらせん秩序を好むらしい。らせん秩序を背景とした磁場誘起相の研究が進みつつある。

共鳴 X 線回折はうまくいけば中性子磁気回折も凌駕すると第 2 節で述べた期待は、いくつか列挙した放射光の特徴が存分に発揮されたことで、果たしてその通りになった。本研究で得られた結果を中性子で出すのは、たとえ原理的には可能であっても、現実的にはほぼ不可能と思われる。一方、Fig. 6 や Fig. 10 でもう一方の Yb サイトの磁気モーメントを描くには、多数の反射点の強度比を調べて互いの角度関係を明らかにする必要がある。そこは共鳴 X 線回折の苦手とするところであり、中性子回折のほうに分がある。また、今後の課題の一つでもある磁気励起の観測は、やはり中性子散乱のほうが圧倒的に有利だ。こうした点が X 線と中性子が相補的といわれる所以であり、今後もその関係がより発展していくことで、磁性研究が進化することを期待したい。多軸回折計を用いた X 線回折は、温度・磁場・圧力という測定環境と、波数・エネルギー・偏光という X 線散乱過程とを組み合わせた広大な測定空間からターゲットをしぼりにしぼって、他の汎用的な手法では観測が困難な秩序構造の観測を目指して一点突破を試みる実験である。様々な利用法があると同時に、決して測定がルーチン化されることはなく、各所で様々な思考が要求される。そこは 50 年以上に渡って今も最前線で使い続けられている中性子三軸分光器との共通点であろう。放射光施設においても多軸回折計が今後も基盤設備の一つとして長く使い続けられることはサイエンスにとって重要である。

**謝辞** 本研究は、高阪勇輔 (大阪府立大学)、大原繁男 (名古屋工業大学)、井上克也 (広島大学) 各氏との共同研究として行われた。研究を進める上での様々な議論や助言に感謝申し上げたい。また、岸根順一郎氏 (放送大学) には、CSL の構造を描くために必要な計算プログラムをご指導いただいた。その他、広島大学キラル国際研究拠点での各種研究会で出会った多くの研究者からの刺激を大いに受けたことも記しておく。本研究は科学研究費補助金 (15K05175, 26400333, 16H01073, 15H05885, 17H02912, 16KK0102) による補助を受けて行われた。放射光実験は SPring-8 課題 (2015B3711, 2016A3761, 2016B3762, 2017A3787) を通じて行われた。広島大学自然科学研究支援開発センター (N-BARD) では、MPMS と EPMA による試料評価を行った。日本学術振興会研究拠点形成事業 (Core-to-core) A によるサポートを受けて行われた。

- 1) G. H. Wagnière, *On chirality and the universal asymmetry*, (VHCA, Zürich & Wiley-VCH, Weinheim, 2007).
- 2) X. Z. Yu, Y. Onose, N. Kanazawa, J. H. Park, J. H. Han, Y. Matsui, N. Nagaosa, and Y. Tokura, *Nature* **465**, 901 (2010).
- 3) 望月維人, 関真一郎: 日本物理学会誌 **69**, 132 (2014).
- 4) 山崎裕一, 中尾裕則: 放射光 **30**, 3 (2017).
- 5) Y. Togawa, T. Koyama, K. Takayanagi, S. Mori, Y. Kousaka, J. Akimitsu, S. Nishihara, K. Inoue, A. S. Ovchinnikov, and J. Kishine, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 107202 (2012).
- 6) J. Kishine and A. S. Ovchinnikov, *Solid State Physics* **66**, 1 (2015).
- 7) Y. Togawa, Y. Kousaka, K. Inoue, and J. Kishine, *J. Phys. Soc. Jpn.* **85**, 112001 (2016).
- 8) Y. Togawa, Y. Kousaka, S. Nishihara, K. Inoue, J. Akimitsu, A. S. Ovchinnikov and J. Kishine, *Phys. Rev. Lett.* **111**, 197204 (2013).
- 9) I. Dzyaloshinsky, *J. Phys. Chem. Solids* **4**, 241 (1958).
- 10) T. Moriya, *Phys. Rev.* **120**, 91 (1960).
- 11) T. Matsumura, Y. Kita, K. Kubo, Y. Yoshikawa, S. Michimura, T. Inami, Y. Kousaka, K. Inoue and S. Ohara, *J. Phys. Soc. Jpn.* **86**, 124702 (2017).
- 12) 岸根順一郎: 日本物理学会誌 **71**, 294 (2016).
- 13) 三田村裕幸: 日本物理学会誌 **71**, 857 (2016).
- 14) 岸根順一郎: 固体物理 **53**, 1 (2018); **53**, 47 (2018).
- 15) R. E. Gladyshevskii, *Acta Cryst. B* **49**, 468 (1993).
- 16) K. Momma and F. Izumi, *J. Appl. Crystallogr.* **44**, 1272 (2011).
- 17) T. Yamashita, R. Miyazaki, Y. Aoki, and S. Ohara, *J. Phys. Soc. Jpn.* **81**, 034705 (2012).
- 18) R. Miyazaki, Y. Aoki, R. Higashinaka, H. Sato, T. Yamashita, and S. Ohara, *Phys. Rev. B* **86**, 155106 (2012).
- 19) Y. Utsumi, H. Sato, S. Ohara, T. Yamashita, K. Mimura, S. Motonami, K. Shimada, S. Ueda, K. Kobayashi, H. Yamaoka, N. Tsujii, N. Hiraoka, H. Namatame, and M. Taniguchi, *Phys. Rev. B* **86**, 115114 (2012).
- 20) S. Ohara, S. Fukuta, K. Ohta, H. Kono, T. Yamashita, Y. Matsumoto, and J. Yamaura, *JPS Conf. Proc.* **3**, 017016 (2014).
- 21) S. W. Lovesey, E. Balcar, K. S. Knight, and J. Fernández-Rodríguez, *Physics Reports* **411**, 233 (2005).
- 22) 平野馨一: 放射光 **11**, 238 (1998).
- 23) Y. Kousaka, H. Ohsumi, T. Komesu, T. Arima, M. Takata, S. Sakai, M. Akita, K. Inoue, T. Yokobori, Y. Nakao, E. Kaya, and J. Akimitsu, *J. Phys. Soc. Jpn.* **78**, 123601 (2009).
- 24) 山内徹, 上田浩明, 大和田謙二, 中尾裕則, 上田寛: 放射光 **31**, 315 (2018).
- 25) M. Shinozaki, S. Hoshino, Y. Masaki, J. Kishine, and Y. Kato, *J. Phys. Soc. Jpn.* **85**, 074710 (2016).
- 26) R. Aoki, Y. Togawa, and S. Ohara, *Phys. Rev. B* **97**, 214414 (2018).
- 27) S. Okumura, Y. Kato and Y. Motome, *J. Phys. Soc. Jpn.* **87**, 033708 (2018).
- 28) H. Ninomiya, T. Sato, K. Inoue and S. Ohara, *Physica B* **536**, 654 (2018).
- 29) K. Umeo, T. Otaki, Y. Arai, S. Ohara and T. Takabatake, *Phys. Rev. B* **98**, 024420 (2018).
- 30) M. Kakihana, D. Aoki, A. Nakamura, F. Honda, M. Nakashima, Y. Amako, S. Nakamura, T. Sakakibara, M. Hedo, T. Nakama, and Y. Onuki, *J. Phys. Soc. Jpn.* **87**, 023701 (2018).
- 31) K. Kaneko, M. D. Frontzek, M. Matsuda, A. Nakao, K. Munakata, T. Ohhara, M. Kakihana, Y. Haga, M. Hedo, T. Nakama, and Y. Onuki, *J. Phys. Soc. Jpn.* **88**, 013702 (2019).
- 32) H. Ninomiya, Y. Matsumoto, S. Nakamura, Y. Kono, S. Kittaka, T. Sakakibara, K. Inoue and S. Ohara, *J. Phys. Soc. Jpn.* **86**, 124704 (2017).
- 33) I. Ishii, K. Takezawa, T. Mizuno, S. Kamikawa, H. Ninomiya, Y. Matsumoto, S. Ohara, K. Mitsumoto and T. Suzuki, *J. Phys. Soc. Jpn.* **87**, 013602 (2018).

Chiral Soliton Lattice Formation in Monoaxial Helimagnet  $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$ Takeshi Matsumura<sup>1</sup>, Sinji Michimura<sup>2</sup>, Toshiya Inami<sup>3</sup><sup>1</sup>Department of Quantum Matter, Graduate School of Advanced Sciences of Matter, Hiroshima University,  
Higashi-Hiroshima, Hiroshima 739-8530, Japan<sup>2</sup>Department of Physics, Faculty of Science, Saitama University, Saitama 338-8570, Japan<sup>3</sup>Synchrotron Radiation Research Center, National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology, Sayo,  
Hyogo 679-5148, Japan

**Abstract** Helical magnetic structures realized in chiral magnet  $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$ , without mirror and centrosymmetry, have been investigated by resonant x-ray diffraction in magnetic fields at very low temperatures. We prepared both the right and left handed crystals and studied the helicity of the magnetic structure by using circularly polarized x-ray beam. It turned out the crystal chirality and the magnetic helicity has a one-to-one relationship, indicating that an antisymmetric Dzyaloshinskii-Moriya interaction indeed exists. The formation of chiral soliton lattice state is also observed when a magnetic field is applied along the direction perpendicular to the helical axis. With increasing the field, the propagation vector  $(0, 0, q)$  shifts to the  $\Gamma$ -point, and the second and third harmonic peaks of  $(0, 0, 2q)$  and  $(0, 0, 3q)$  develop simultaneously. We describe how the first observation of the chiral soliton lattice state in  $f$ -electron systems has been performed. We also describe the characteristics and the interests of the chiral magnets in  $f$ -electron systems.