

重い電子系 URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> における高次多極子秩序状態の検証Search for a Possible Higher-Order Multipole Ordering State  
in the Heavy Electron System URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>網塚 浩<sup>1)</sup> 川崎郁斗<sup>1)</sup> 池田陽一<sup>1)</sup> 高山茂貴<sup>1)</sup> 横山淳<sup>2)</sup> 稲見俊哉<sup>3)</sup> 本間佳哉<sup>4)</sup>

Hiroshi AMITSUKA Ikuto KAWASAKI Yoichi IKEDA Shigeki TAKAYAMA Makoto YOKOYAMA

Toshiya INAMI Yoshiya Homma

<sup>1)</sup>北海道大学 <sup>2)</sup>茨城大学 <sup>3)</sup>原子力機構 <sup>4)</sup>東北大学金研

重い電子系 URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の純良単結晶について U M<sub>IV</sub> 吸収端 (3.73eV) での共鳴 X 線散乱実験を実施し、未解明の低温秩序相に関して高次多極子秩序の可能性を調べた。その結果、少なくとも注目されている波数を含む散乱面においては、現状精度内で多極子秩序を示す有意な散乱が無いことが判明した。

**キーワード** : 隠れた秩序, 高次多極子秩序, 共鳴X線散乱, 重い電子系, ウラン化合物

**1. 目的** 強相関 f 電子系における重要課題の一つに「隠れた秩序」の問題が挙げられる。隠れた秩序とは、比熱等の熱力学量には 2 次相転移を示す異常が観測されるにも拘わらず、中性子散乱等のマイクロ測定で秩序変数が定まらない秩序のことをいう。本研究の対象物質 URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> (体心立方晶 ThCr<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> 型, I4/mmm) における T<sub>0</sub> = 17.5 K の相転移はその典型例として注目され、多年に渡り精力的な研究が続けられているが、未だ解明には至っていない[1-3]。本研究の目的は、この系の隠れた秩序変数として予想されている、ウラン 5f 電子の電気四極子、磁気八極子秩序の可能性を共鳴 X 線散乱 (RXS) の実験手法を用いて検証することにある。

**2. 方法** URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> に対する RXS 実験は、すでに日本・フランス・米国の各国グループによって実施されている[4,5]。いずれの実験からも高次多極子秩序の兆候は検出されていないが、一方で  $Q = (1,0,0)$  の反強磁性 (AF) 磁気反射ピークが共通に観測され、報告されている。この AF 秩序の存在は、当初から中性子実験によって知られており、隠れた秩序変数そのもの、あるいは隠れた秩序に歪み等を介して誘起される現象と考えられていた[6]。しかしながら、最近私たちが行った高圧下中性子散乱実験[7]、および、それに続く様々なグループの圧力効果の研究[8,9]によって、この物質が 0.5 GPa 程度の圧力下で AF 秩序すること、そして上記の AF 反射は、この高圧 AF 相が常圧相に混入した 2 相分離を見たものであることがわかってきた。したがって過去の RXS 実験では、試料の質のために生じた強い磁気反射にマスクされ、多極子秩序の信号を見落としていた可能性がある。一方、最近私たちは、この AF 相の混入量が一桁以上少ない単結晶試料の合成に成功した[10]。そこで本研究では、混在 AF 相からの寄与を抑えた、この「低歪み試料」を用いて共鳴 X 線散乱実験を実施し、高次多極子による反射がないかを調べた。実験は BL22XU において 2 軸回折計を用い、散乱エネルギー 3.73 keV (U M<sub>IV</sub> 吸収端)、温度範囲 5 K ~ 20 K 無磁場の条件で行った。

**3. 研究成果**  $q = (0,0,3)$ ,  $(1,0,2)$  で観測される散乱ピークについて、温度およびアジマス角依存性を詳細に調べた。その結果、 $Q = (1,0,0)$  に対応する散乱は純粋に AF 秩序の磁気モーメントによるものであり、これ以外の寄与を含んでいない事が、過去最高の実験精度 (過去の報告に比べて S/N は約 2 桁向上) で判った。さらに、中性子散乱において強い磁気揺らぎが観測される  $Q' = (1,0,4,0)$ 、およびこれを含む散乱面 (h,0,l) 上には有意な散乱がないことが判った。また、AF 散乱ピークの中心が格子整合位置より僅かにずれている事がわかり、試料表面の歪んだ領域で AF 秩序が発生していることを初めて微視的に確認することに成功した。

**4. 結論・考察** 本研究によって、中性子散乱実験から予測された秩序波数には高次多極子秩序は無いことがほぼ確実となり、隠れた秩序の解明に向け研究を一段階進めることができた。今後は、異なる散乱面での探査を行っていく必要がある。また、微少な格子歪みにより不均一に誘起される磁性を判定する上で共鳴 X 線散乱の実験手法が有用であることが判り、今後、同様の系への適用を進めていく予定である。

**5. 引用(参照)文献等**

- [1] W. Schlitz et al., Z. Phys. **B62** (1986) 171. [2] M.B. Maple et al., Phys. Rev. Lett. **56** (1986) 185. [3] T.T.M. Palstra et al., Phys. Rev. Lett. **56** (1985) 2727. [4] E.D. Isaacs et al. Phys. Rev. Lett. **65** (1990) 3185. [5] N. Bernhoeft et al., Acta Phys. Pol. **34** (2003) 1367. [6] C. Broholm et al., Phys. Rev. Lett., **58** (1987) 1467. [7] H. Amitsuka et al., Phys. Rev. Lett. **83** (1999) 5114. [8] K. Matsuda et al., Phys. Rev. Lett. **87** (2001) 087203. [9] G. Motoyama et al., Phys. Rev. Lett. **90** (2003) 166402. [10] H. Amitsuka et al., J. Magn. Magn. Mater. **310** (2007) 214.