重い電子系 URu_2Si_2 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_2Si_2

網塚　浩[1)]　川崎郁斗[1)]　池田陽一[1)]　高山茂貴[1)]　横山淳[2)]　稲見俊哉[3)]　芳賀芳範[3)]　本間佳哉[4)]

Hiroshi AMITSUKA　Ikuto KAWASAKI　Yoichi IKEDA　Shigeki TAKAYAMA　Makoto YOKOYAMA　Toshiya INAMI　Yoshinori HAGA　Yoshiya Homma

[1)]北海道大学　[2)]茨城大学　[3)]原子力機構　[4)]東北大学金研

重い電子系 URu_2Si_2 および UPt_3 の純良単結晶ついて U M_{IV} 吸収端（3.73eV）での共鳴 X 線散乱実験を実施し，URu_2Si_2 における高次多極子秩序の可能性の検証，ならびに両物質で観測される弱い反強磁性の起源について調べた。

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，弱い反強磁性

１．目的　多くのf電子系化合物（希土類，アクチノイド化合物）は，低温でf電子の磁気双極子モーメントが凍結する磁気秩序を示す。これに対し，近年，電気四極子や磁気八極子などの高次多極子自由度が秩序化する現象があることが分かってきた。磁気相転移は通常，中性子回折を用いて直接確認されるが，高次多極子秩序は中性子散乱能が弱く観測が難しい。これに対し，共鳴X線散乱は f 電子の電荷分布の対称性を観測できるため，電気四極子秩序の直接的観測手段として，また，磁気八極子の間接的観測手段として脚光を浴びている。本研究の目的は，秩序変数が長年未解明で「隠れた秩序」と呼ばれているURu_2Si_2の相転移について，共鳴X線散乱を用いて高次多極子秩序の可能性を探ること，また，URu_2Si_2 およびUPt_3において観測される非常に弱い反強磁性について，それが試料中に不均一に発生している可能性を探ることである。

２．方法

URu_2Si_2およびUPt_3の純良単結晶試料をそれぞれ北大, 原研先端研においてCzochralsky 法によって作成した。いずれも *c* 面で劈開して清浄表面を出し，He ガス中で試料容器に密封して，SPring-8 へ移送した。共鳴 X 線散乱実験は, 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_{IV} 吸収端), 温度範囲 5 K ~ 20 K，零磁場の条件で行った。

３．研究成果　URu_2Si_2 について，$\boldsymbol{q}$ = (0,0,3), (1,0,2)で観測される散乱ピークの温度およびアジマス角依存性を詳細に調べた。その結果，$\boldsymbol{Q}$ = (1,0,0)に対応する散乱は純粋に反強磁性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）で確認した[1, 2]。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$\boldsymbol{Q}'$ = (1,0.4,0) [3]，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を示した。さらに，反強磁性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分かった。この結果と中性子散乱実験の散乱強度（μ_{ord} ~ 0.03 μ_B /U）を考え合わせると，反強磁性は，試料表面の歪んだ領域で不均一に発生しているものと結論づけられる。UPt_3 の弱い磁性（同じくμ_{ord} ~ 0.02 μ_B /U程度 [4]）についても同様の現象が観測されるのではないかと期待し，予想される磁気反射位置q = (-1/2, 0, 2)において反強磁性の観測を試みた。しかしながら，今回の実験精度内では磁気反射を観測することができなかった。一方，高調波を用いて回折角の入射エネルギー依存性を調べたところ，結晶表面と内部で僅かに格子定数が異なっていることが分かった。

４．結論・考察　URu_2Si_2 については，中性子散乱実験から有力視されていた秩序波数$\boldsymbol{Q}$ = (1,0,0)と(1,0.4,0)には高次多極子秩序は無いことがほぼ確実となり，可能な秩序変数を絞り込むための有益な情報をえることができた。また，弱い反強磁性が結晶歪みによって誘起されていることを初めて微視的に示すことに成功した。UPt_3 については，現時点で明確なことは言えないが，試料表面の劣化，磁性が観測精度より弱い，あるいは，URu_2Si_2 同様に不均質だが，試料内部で発生している，といった可能性が考えられる。

５．引用（参照）文献等

[1] E.D. Isaacs et al. Phys. Rev. Lett. **65** (1990) 3185.
[2] N. Bernhoeft et al., Acta Phys. Pol. **34** (2003) 1367.
[3] C. Broholm et al., Phys. Rev. Lett., **58** (1987) 1467.
[4] G. Aeppli et al., Phys. Rev. Lett. **60** (1988) 615.