

共鳴 X 線散乱による UNi₄B における反強磁性秩序の研究 Resonant X-Ray Scattering Study on Antiferromagnetic Order of UNi₄B

村田怜也¹, 今布咲子¹, 金子佑真¹, 田端千紘², 中尾裕則³, 齋藤開⁴,
清水悠晴⁵, 青木大⁵, 日高宏之¹, 柳澤達也¹, 網塚浩¹

¹北海道大学, 大学院理学院, 〒060-0810 北海道札幌市

²京都大学, 複合原子力科学研究所, 〒590-0494 大阪府泉南郡熊取町

³高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 放射光
〒305-0801 つくば市大穂 1-1

⁴東京大学, 中性子科学研究施設 〒319-1106 那珂郡東海村

⁵東北大学, 金属材料研究所, 〒311-1313 東茨城郡大洗町

Ryoya MURATA^{1,*}, Fusako KON¹, Yuma KANEKO¹, Chihiro TABATA²,

Hironori NAKAO³, Hiraku SAITO⁴, Yusei SHIMIZU⁵, Dai AOKI⁵,

Hiroyuki HIDAKA¹, Tatsuya YANAGISAWA¹ and Hiroshi AMITSUKA¹

¹Hokkaido University, Sapporo, Hokkaido, 060-0810, Japan

²Kyoto University, Kumatori, Osaka, 590-0494, Japan

³Photon Factory, Institute of Materials Structure Science,
High Energy Accelerator Research Organization,
1-1 Oho, Tsukuba, 305-0801, Japan

⁴Univ. of Tokyo, Tokai, Ibaraki, 319-1106, Japan

⁵Tohoku University, Oarai, Ibaraki, 311-1313, Japan

1 はじめに

ウラン系化合物 UNi₄B は、20.4 K ($\equiv T_N$) で、ウランの磁気モーメントが渦状に秩序した反強磁性 (AF) 相へと転移する[1]。近年、速水らはこの渦状磁気構造を、奇パリティの拡張磁気多極子である磁気トロイダル双極子の一様秩序と見なせることを示し、本物質で電気磁気 (ME) 効果が期待されることを見出した[2]。この理論を受け、我々は実際に UNi₄B 単結晶を用いて電流下での磁化測定を行い、AF 秩序とともに一様な磁化が生ずることを初めて確認した[3]。この実験結果は理論の正しさを実証している一方で、ME 効果が生じないと予想されていた電流誘起磁化の配置でも、一様磁化が観測されるという問題も提起した。そして、この実験事実が示すのは、本物質の結晶構造もしくは磁気構造、あるいはその双方が、理論で仮定されている理想的なハニカム構造上の渦状磁気構造と異なる可能性である。

そこで我々は共鳴 X 線散乱実験を行い、本物質の結晶構造および磁気秩序状態を明らかにしようと試みた。

2 実験

測定は BL-11B にて、U の M₄ 吸収端に相当する 3.72 keV の放射光を用いた共鳴 X 線散乱の方法を用いて行った。試料は以前より報告があった直方晶構造 (空間群: Cmc₂m, D_{2h}¹⁷, No. 63) [4,5] の方位に基づ

いて面を切り出したものを、銅のホルダー内にワニスで固定し、カプトンテープで密閉し使用した。測定温度範囲は 5 ~ 300 K で、He フロー型冷凍機を用いて冷却を行なった。

3 結果および考察

まず、本物質の結晶構造が初期に報告されていた六方晶構造 (P6/mmm, D_{6h}¹, No. 191) [1]ではなく、近年報告されている直方晶構造 (Cmc₂m) であることを確認するために、300 K において基本反射の観測を行った。その結果、六方晶構造では説明できない基本反射を観測し、それらは直方晶構造で矛盾なく説明できる回折位置にあることがわかった。

次に、磁気秩序下 (5 K) において秩序波数 $\mathbf{q} = (0, 2/3, 0)$ に対応する超格子反射を観測した。これらは図 1 に示したエネルギー依存性を見ると 3.72 keV にピークを持つことから U の M₄ 吸収端に伴う共鳴反射であることがわかる。さらにこの共鳴反射強度は T_N から増大する振る舞いが見られた。以上から本物質は T_N 以下で、直方格子上的秩序波数 $\mathbf{q} = (0, 2/3, 0)$ で記述される磁気構造を持つことがわかった。過去の中性子散乱実験は、逆格子点が直方晶に対して粗となる六方晶構造を仮定して行われており、そこで観測された反射は全て本実験においても観測された。しかし、本実験では中性子散乱実験では報告されていない回折位置の反射も観測されており、それらは

全て上述の通り直方晶格子に対しては矛盾のないものとなっている。

また、注目すべき点として、観測された超格子反射が、その指数によって温度に対して非線形および線形の2種類の依存性を示す振る舞いが観測されたことが挙げられる(図2)。この振る舞いは UNi₄B の異なる試料においても、また散乱面を変えて測定を行なっても観測されており、試料や実験条件に由来しない UNi₄B の本質的な性質であると考えられる。

この起源はまだわかっていないが、これら2種類の反射の T_N 以下の温度依存性についておおよその臨界指数 β を見積ると、非線形的な振る舞いを示す反射では $\beta \sim 0.3$ 、線形の振る舞いを示す反射では $\beta \sim 0.5$ となる。 $\beta \sim 0.3$ は3次元ハイゼンベルグまたは3次元 XY 模型、 $\beta \sim 0.5$ は平均場近似での理論値に近い。ただし、転移点近傍のデータ数が十分ではないため、正確な臨界指数の値を得るためにはさらなる詳細な実験が必要である。

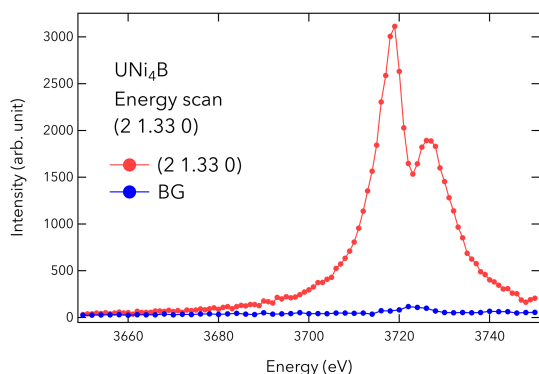


図1: UNi₄B の 5 K における (2 1.33 0) 反射強度のエネルギー依存性。

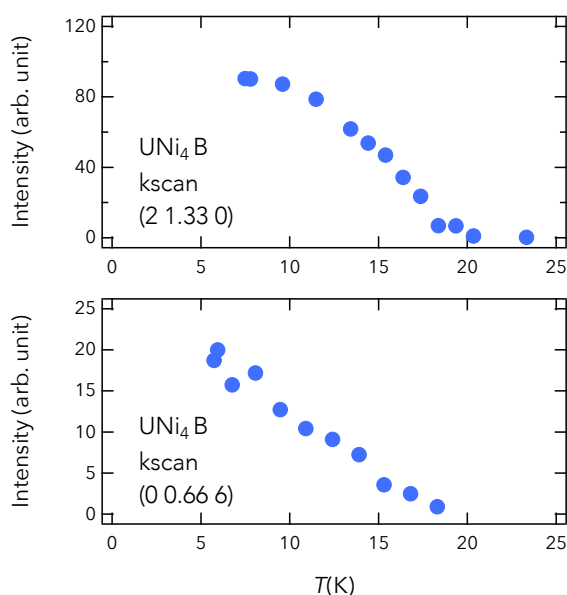


図2: UNi₄B における (2 1.33 0) (上) と (0 0.66 6) (下) における超格子反射の温度依存性。

4 まとめ

我々は BL-11B においてウラン系金属化合物 UNi₄B の共鳴 X 線散乱実験を行った。結晶構造は直方晶構造 (Cmcm) で指数がつけられること、磁気秩序下では秩序波数 $\mathbf{q} = (0, 2/3, 0)$ の秩序構造を持つことがわかった。さらにその共鳴反射には2種類の温度依存性があることを明らかにした。

今後は偏光解析により本物質の磁気構造をさらに詳しく調べるとともに、アジマス角依存性を測定することで異なる多極子の寄与の有無を確認することも重要な課題である。また、散乱強度に見られた2種類の温度依存性についても考察を深める必要がある。

謝辞

本研究は JSPS 科研費 JP15H05882 及び J15H05885 (J-Physics) の助成を受けたものです。

参考文献

- [1] S.A.M. Mentink *et al.*, Phys. Rev. Lett. **73**, 1031 (1994).
- [2] S. Hayami *et al.*, Phys. Rev. B **90**, 024432 (2014); J. Phys.: Conf. Ser. **592**, 012101 (2015).
- [3] H. Saito *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **87**, 033702 (2018).
- [4] Y. Haga *et al.*, Physica B **403**, 900 (2008).
- [5] C. Tabata *et al.*, Poster presentation, W6-08, International Conference on Magnetism (ICM2018), San Francisco (2018).

* ryoryo@phys.sci.hokudai.ac.jp