

共鳴 X 線散乱実験による UIr_2Ge_2 の磁気構造解析 Resonant X-Ray Scattering Study on Magnetic Structure of UIr_2Ge_2

今布咲子^{1*}, 鈴木悠介¹, 高力暁成¹, 村田怜也¹, 金子佑真¹, 日高宏之¹, 柳澤達也¹,
田端千紘², 中尾裕則³, 清水悠晴⁴, 青木大⁴, 網塚浩¹

¹北海道大学大学院, 理学院, 〒060-0810 北海道札幌市北区北 10 条西 8 丁目

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朝代西 2 丁目

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

⁴東北大学, 金属材料研究所, 〒311-1313 茨城県東茨城郡大洗町成田町 2145-2

Fusako Kon^{1*}, Yusuke Suzuki¹, Akinari Koriki¹, Ryoya Murata¹, Yuma Kaneko¹,
Hiroyuki Hidaka¹, Tatsuya Yanagisawa¹, Chihiro Tabata², Hironori Nakao³, Yusei Shimizu⁴,
Dai Aoki⁴, and Hiroshi Amitsuka¹

¹Graduate School of Science, Hokkaido University, Sapporo, 060-0810, Japan

²Institute for Integrated Radiation and Nuclear Science, Kyoto University, Osaka 590-0494, Japan

³Institute of Materials Structure Science, Photon Factory, 1-1 Oho, Tsukuba, 305-0801, Japan

⁴International Research Center for Nuclear Materials Science, IMR Tohoku University, Ibaraki 311-1313, Japan

1 はじめに

ウラン化合物 UIr_2Ge_2 について、単結晶試料を用いた共鳴 X 線散乱実験により磁気構造を初めて調べた結果を報告する。本物質は正方晶 CaBe_2Ge_2 型構造 (空間群: $P4/nmm$, D_{4h}^7 , No. 129) をとり[1,2]、単位胞内で空間反転対称性の欠如したサイトを占める二つの U イオンが反転対称対をなすという特徴がある。このような構造において、もし磁気双極子が秩序波数 $\mathbf{Q} = 0$ で交替的に秩序すると、その秩序状態は対称性の観点から奇パリティのクラスター型磁気多極子の強制的秩序と見なすことができ、電流誘起磁化などの交差相関応答が予測できる。 CaBe_2Ge_2 型構造はこのような奇パリティ磁気多極子が活性となる系の最もシンプルな例を与える可能性があり、近年注目されている。実際に本物質と同一の結晶構造である UIr_2Si_2 では 6 K 以下で $\mathbf{Q} = 0$ の反強磁性秩序が報告されている[3]。

これまでに我々は UIr_2Ge_2 の単結晶試料を用いた電気抵抗・比熱・磁化の測定を行い、本系が 18.2 K ($\equiv T_N$) で反強磁性秩序を示唆する相転移を示し、 c 軸を磁化容易軸とした強い磁気異方性や、秩序相においても重い電子状態の特徴を持つ物質であることを確認した[4]。本研究では、この秩序の微視的機構を調べるため、KEK Photon Factory の BL-11B において共鳴 X 線散乱実験を行った。

2 実験

測定は PF BL-11B にて 3.70 ~ 3.75 keV の軟 X 線と、シリコンドリフト検出器 (SDD) を用いて行った。試料は直径約 2 mm の単結晶試料を銅のホルダーに銀ペーストで固定したものをを使用した。測定温度範囲は 6 K ~ 24 K で、冷却には He フロー型冷凍機を用いた。

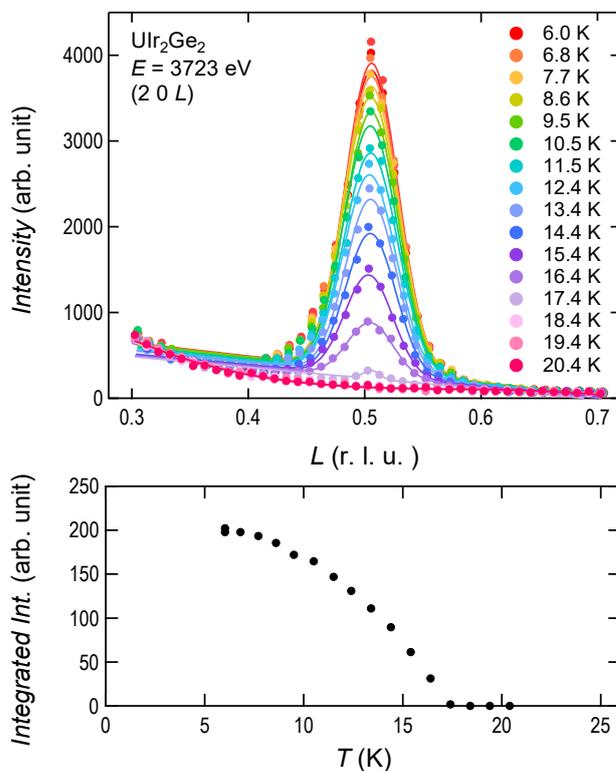


図 1: 磁気反射(2 0 1/2)の温度プロファイルと Gaussian-fit の結果 (上) およびフィッティング結果から算出した積分強度の温度依存性 (下)

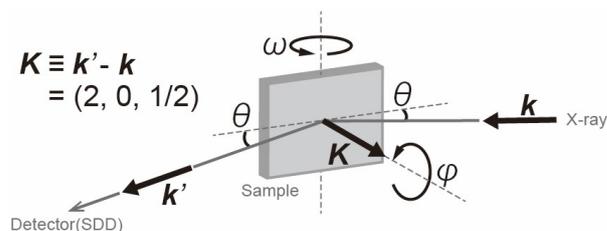


図 2: アジマス角(ϕ)依存性測定におけるセッティング

3 結果および考察

散乱面を a^* - c^* 面にとり磁気反射の探索を行ったところ、U の M_4 端 ($3d \rightarrow 5f$ 遷移: 3.723 keV) での共鳴散乱による超格子反射が、(逆格子点) + (0, 0, 1/2) の位置に T_N 近傍より低温で連続的に成長する様子が確認された (図 1)。本物質の磁化率が T_N でカスプ異常を示すことから、 T_N 以下では秩序波数ベクトル $q = (0, 0, 1/2)$ を伴う反強磁性秩序状態が実現していることが示唆される。

この結果を基に、さらに磁気反射強度のアジマス角 (以下 φ) 依存性の測定を図 2 のようなセッティングで、 $\varphi = 0^\circ$ で試料の [010] 軸が散乱面と垂直になるようにし、 $\varphi = -100^\circ \sim 90^\circ$ の範囲で行った。各 φ の値での磁気反射から積分強度を算出し、 φ -依存性を求めた結果が図 3 である。算出された積分強度は φ に対して 2 回対称性を持つ振る舞いを示しており、この結果は U のサイト上に磁気双極子が反強的に秩序した状況で期待される結果と良く一致している。

以下では本系の磁気構造解析について述べる。秩序波数 $q = (0, 0, 1/2)$ を伴う空間群 $P4/nmm$ の最大磁気空間群のうち、磁気容易軸が c 軸になるものは $P_{2c}4/nm'm'$ (No. 129.13.1087) のみである。この磁気空間群に属する磁気構造は図 4 (a) もしくは (b) の 2 通りが考えられる。これらの磁気構造を仮定し磁気反射強度 I_{mag} の φ -依存性を計算すると、いずれの場合も

$$I_{mag}(\varphi) \propto -\cos 2\varphi + I_0$$

となった。上式を用いて行ったフィッティング結果が図 3 中の曲線であり、非常に良く一致している。以上の結果から、本物質の磁気秩序では磁気双極子が図 4(a) もしくは (b) のように整列した磁気構造が発現していることが示唆される。

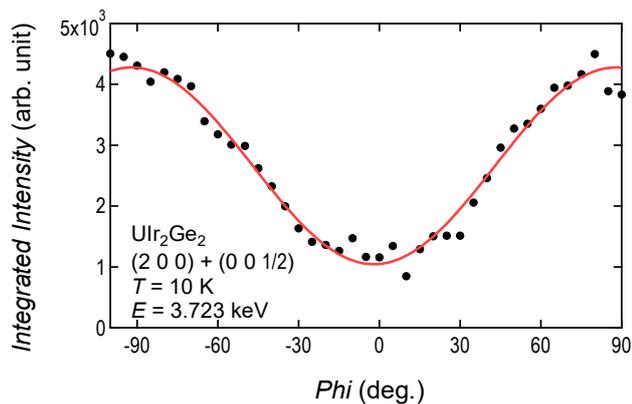


図 3: 磁気反射の積分強度における φ 依存性

4 まとめ

本研究では UIr_2Ge_2 で報告されていた磁気秩序の微視的機構を初めて調べ、磁気双極子が秩序波数 $q = (0, 0, 1/2)$ で反強的に秩序している可能性が明らかとなった。

当初の目的で期待した $Q = 0$ を持つ系ではなかったが、長周期構造が観測されたことから、磁気フラストレーションの存在が示唆され、この磁気構造の発生機構に興味を持たれる。今後は磁化・比熱・電気抵抗測定の結果と照らし合わせ、本秩序の起源に関する考察を深めたい。

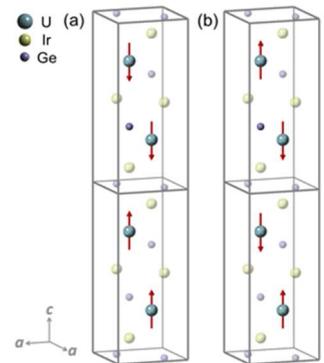


図 4: 予想される磁気構造

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] B. Lloret *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **67**, 232 (1987).
- [2] A. A. Menovsky, J. Magn. Magn. Mater. **76** and **77**, 631 (1988).
- [3] A. Vernière *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **153**, 55 (1996).
- [4] 今布咲子他、日本物理学会 2019 年秋季大会 (岐阜大学)、12pB12-13、2019 年 9 月 12 日

23kon@phys.sci.hokudai.ac.jp