

放射光単結晶 X線回折による URu₂Si₂ の構造解析 Structural Analyses of URu₂Si₂ by Synchrotron Radiation Single-Crystal X-Ray Diffraction

田端千紘, 三浦植幸, 安孫子和弘, 日高宏之, 柳澤達也, 横山淳^A, 網塚浩,
小林賢介^B, 熊井玲児^B, 中尾裕則^B, 村上洋一^B
北大理, 茨城大理^A, 高工研^B

1 はじめに

URu₂Si₂ (ThCr₂Si₂ 型体心正方晶, 空間群 *I4/mmm*) は, $T_0 = 17.5$ K で起こる相転移の秩序変数が不明であることから, 25 年以上の間多くの関心を集めてきた物質である[1~3]。この相転移は「隠れた秩序」と呼ばれ, この謎を解明するために様々な理論的・実験的研究が行われてきた。その中でも X 線や中性子を用いた回折実験および熱膨張測定の実験において, 隠れた秩序に伴う格子の歪みの有無や格子定数の温度変化などが精密に調べられており[4~6], *I4/mmm* からの対称性の低下が実験の精度内で無いことが報告されている。その一方で, 結晶構造の内部パラメータの変化の有無についてはこれまでほとんど報告されていない。

ThCr₂Si₂ 型の結晶構造においては, 4(e)サイトの Si 原子の z 位置パラメータがフリーパラメータであり, 先行研究では室温で $z = 0.371$ と報告されている[7]。4(e)サイトの Si 原子は c 軸上で U 原子の上下の最隣接位置にあるため, 隠れた秩序相における Si の s , p 軌道と U の $5f$ 軌道の混成効果やバンド構造などを考える上で, z パラメータを正確に決めることは重要であると考えられる。

我々は放射光 X 線を用いて, URu₂Si₂ の単結晶試料に対して X 線構造解析を行い, Si の z パラメータおよび原子変位パラメータの温度変化を調べた。

2 実験

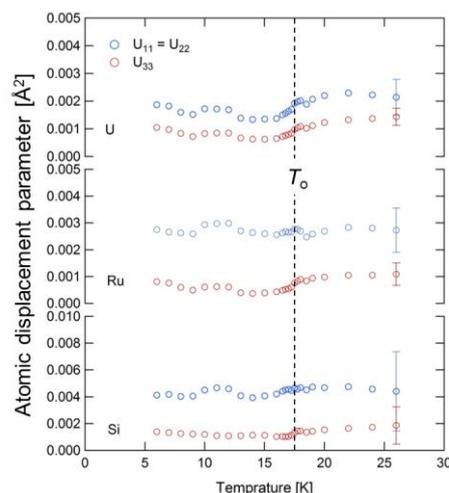
測定は直径約 20 μ m の単結晶試料を 0.1 ϕ の銅線の先にワニスで固定したものを使用し, PF の BL-8B でイメージングプレート型回折計を用いて行った。17.01keV の X 線を用い, 振動写真法で回折強度データを収集した。測定温度範囲は 6 K~26 K で, 冷却には GM 冷凍機を用いた。

以上の測定から得られた回折強度データに対して, 最小自乗フィッティングプログラム Shelx[8]を用い, 各温度での構造パラメータ(原子変位パラメータ及び Si の z パラメータ)の精密化を行った。

3 結果および考察

構造パラメータの精密化の結果, Si の z パラメータと各原子の原子変位パラメータの温度変化に $T_0 = 17.5$ K 付近で階段状の異常がみられた(図)。しかし Si の z パラメータが回折強度に与える寄与は小さ

く, z パラメータを固定して最小二乗フィットを行ってもフィッティング結果にほとんど影響を及ぼさないことが分かった。これに対して U 原子の原子変位パラメータが回折強度に対して支配的であり, 隠れた秩序に伴って U 原子の周りの電子密度分布に何らかの変化が起こっている可能性が考えられる。



図：原子変位パラメータの温度変化

4 まとめ

PF の BL-8B で URu₂Si₂ における放射光 X 線回折実験を行い, 結晶の構造パラメータの温度変化を調べた。その結果, 20 μ m 程度の小さな単結晶において, Si の z パラメータ及び原子変位パラメータに相転移温度付近で異常を示すことが分かった。これらのパラメータのうち, U の原子変位パラメータが回折強度の変化に特に大きく寄与することから, U 原子の電子密度分布が相転移に伴って変化している可能性がある。

参考文献

- [1] T.T.M. Palstra *et al.*, Phys. Rev. Lett. 55, 2727 (1985).
- [2] M.B. Maple *et al.*, Phys. Rev. Lett. 56, 185 (1986).
- [3] W. Schlitz *et al.*, Z. Phys. B 62, 171 (1986).
- [4] N. Kernavanois *et al.*, Physica B 259-261, 648 (1999).
- [5] P.G. Niklowitz *et al.*, Phys. Rev. Lett. 104, 106406 (2010).
- [6] A. de Visser *et al.*, Phys. Rev. B 34, 8168 (1986).
- [7] G. Cordier *et al.*, J. Less-Common Met. 110, 327 (1985).
- [8] Sheldrick, G.M., Acta Cryst. A64, 112-122 (2008).

c.tabata@phys.sci.hokudai.ac.jp