

2012A3825

BL23SU

## UCu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> のメタ磁性転移の軟 X 線磁気円二色性による研究 Study of Metamagnetic Transition of UCu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> Using Soft X-ray Magnetic Circular Dichroism

竹田 幸治, 岡根 哲夫  
Yukiharu Takeda, Tetsuo Okane

(独) 日本原子力研究開発機構  
Japan Atomic Energy Agency

(独) 日本原子力研究開発機構(JAEA)の専用ビームラインである重元素科学ビームライン BL23SU の RI 実験棟では、軟 X 線を利用した角度分解光電子分光および内殻吸収磁気円二色性を相補的に利用し、ウラン化合物の電子状態および磁気状態の研究を進めている。ウラン化合物は超伝導と強磁性の共存という特異な物性を示し、その起源の解明は固体物理学の重要な課題である。メタ磁性転移を示す物質について、元素選択的磁気プローブである軟 X 線磁気円二色性 (以下、XMCD) を利用して元素ごとの磁性を詳細に調べることはウラン化合物における強磁性の起源の知見を得るうえで重要な研究テーマである。

キーワード：5f 電子系、ウラン化合物、メタ磁性転移、国際規制物資計量管理

### 背景と研究目的：

超伝導と強磁性の共存はウラン化合物が示す特異な物性の一つである。一般的には、超伝導と強磁性は相容れない物性であり、固体物理学において解明すべき重要な課題である。ウラン化合物の物性は U 5f 電子が支配していると考えられているが、U 5f 電子状態については、d 電子系や 4f 電子系に比較して、理解が進んでいないのが現状である。強磁性ウラン化合物の磁性を理解するうえで、元素・軌道選択的磁気プローブである XMCD を用いた研究は、強磁性への U 5f 電子の寄与およびそのリガンド元素の寄与をそれぞれ分離して把握でき、通常の磁化測定とは異なるユニークなアプローチである。

本研究では、温度だけでなく外部磁場の印加によって強磁性が発現するメタ磁性転移をターゲットにする。メタ磁性転移を示すウラン化合物として UCoAl と UCu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> などが知られている。2011B 期までは UCoAl における U と Co 磁性の分離の研究を行ってきた<sup>[1]</sup>。この研究成果を踏まえ、2012A 期では UCu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の XMCD による研究を計画した。

UCu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> はキュリー温度  $T_C \sim 100$  K よりもわずかに高い温度領域  $100$  K  $< T < 106$  K において  $H \sim 1$  kOe ( $H // c$ -axis) で反強磁性から強磁性へのメタ磁性転移を示す(Fig.1)<sup>[2]</sup>。  $H > 1$  kOe で磁化が飽和せず磁場増大に対して磁化が増大する。本実験課題では、U と Cu がそれぞれどのような磁気的な振舞いを示すのかを調べることを目的とし、U  $N_{4,5}$  (4d-5f) および Cu  $L_{2,3}$  (2p-3d) 吸収端における XMCD の温度・磁場依存性を測定することを計画した。この物質に対する XMCD 実験は岡根らにより行われており、U  $N_{4,5}$  吸収端だけでなく Cu  $L_{2,3}$  吸収端においても XMCD シグナルが観測されている。その結果から、U  $N_{4,5}$  吸収端の XAS と XMCD スペクトル形状はウラン化合物の典型的な形状であることが分かっている。一方、Cu  $L_{2,3}$  吸収端の XMCD スペクトルは  $L_{2,3}$  とともに同符号のシグナルが観測されているが、ほかに報告例がなく<sup>[3]</sup>、再現性を検証する必要がある。

### 実験：

吸収強度の測定方法の一つに全電子収量法(TEY)がある。BL23SU の XMCD 測定装置においては TEY を採用している。軟 X 線領域の TEY による吸収測定でバルク電子状態を調べたいときには、表面の電子状態の影響を極力抑えるために、試料の清浄表面の準備が必要不可欠である。今回の実験では、清浄表面は超高真空槽内で試料を破断する方法を選択した。一方で、ウラン化合物は国際規制物資であるので、重量管理が義務付けられている。そこで、Fig.2 に示すように試料下部をキャリアに取り付けたホルダーに接着し、さらに試料の上部に番号付きポストを接着し、

全重量 (Fig.2 A) を計量記録する。そのうえで装置の超高真空槽に導入し、ポストに撃力を加えることで試料を破断する。この際、番号付きポストと試料の一部は専用の回収皿に落下するが、ポストの番号からどの試料の片割れかを判別することができる。実験終了後、キャリアーとホルダーおよび試料 (Fig.2 C)、および番号付きポストと試料 (Fig.2 B) の計量を行い、その合計 (Fig.2 B + C) と破断前の全重量 (Fig.2 A) との一致 ( $A = B + C$ ) をもってウラン化合物の全量回収を確認している。この作業については、大型放射光施設 RI 実験棟国際規制物資計量管理規定実施要項の第 19 条第 1 項に定められた国際規制物資に関する作業手順を記載した「国際規制物資計量管理作業手順書」に詳細がある。Fig.3 に、ウラン化合物試料の破断前の写真を示す。番号付きポストを接着したウラン化合物試料をホルダーに接着固定し、そのホルダーをキャリアーにネジで固定している。

上記、試料破断を無事終えたのちに、 $U N_{4,5}$  および  $Cu L_{2,3}$  吸収端での XMCD スペクトルおよび、XMCD 強度の温度・磁場依存性を測定する予定であった。

### 結果および考察：

今回、ポストに撃力を加えた際、試料が破断されるのではなく試料とホルダーとの接着が剥がれてしまった。よって、ホルダー側に試料片が残らず、本ビームタイムでは実験データを一切得ることができなかった。

$UCu_2Si_2$  単結晶試料は育成が難しく貴重であったため、過去に実験で用いた試料を再利用した。つまり、既にホルダーに接着された試料に対し、ポストを再接着し準備した。その際、ホルダーと試料の過去の接着部も新たに補強した。しかしながら、破断時の撃力により、ホルダーから接着剤もろとも試料が剥がれてしまった。過去の実験では十分な強度を保っていた接着が劣化していた。これは接着剤の経年劣化あるいは今回の試料準備における再加熱による劣化が原因ではないかと考えている。

回収した試料のさらなる再利用のためには、試料に付着している接着剤を削り落とし、新たなホルダーに接着する必要がある。しかしながら、この作業では接着剤の削り落としした粉に国際規制物資が混ざる可能性が生じ、計量管理の観点から断念せざるを得なかった。一方、研究の重要性に鑑み、新たな試料の育成を JAEA の先端基礎研究センターのアクチノイド物質開発研究グループに依頼したが、XMCD 実験に必要な試料サイズ (0.5 mm 角、長さ 1 mm 程度) の単結晶試料の入手には至らなかった。さらに、試料育成担当者の異動により当面の試料調達の見通しが立たなくなった。以上により、本研究の継続を断念した。

### 今後の課題：

試料の入手が可能になれば、研究を再開するべきだと考えている。試料は可能な限り、比較的弱い力でも破断ができるように細長く整形したものを準備するように努める。現在では、ホルダーと試料の固定強度を増強させるため、ホルダーに試料の大きさに合わせた穴や溝を設け、そこに試料を埋め込むような工夫を施すようにしている。その一方で小さい試料でも測定位置を効率よく調整できる装置を整備していく必要がある。

### 参考文献：

- [1] Y. Takeda *et al.*, *Phys. Rev. B* **88**, 075108 (2013).
- [2] T. D. Matsuda *et al.*, *J Phys. Soc. Jpn* **74**, 1552 (2005).
- [3]  $Cu L_{2,3}$  吸収端での XMCD スペクトル例として T. S. Herng *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 207201 (2010).

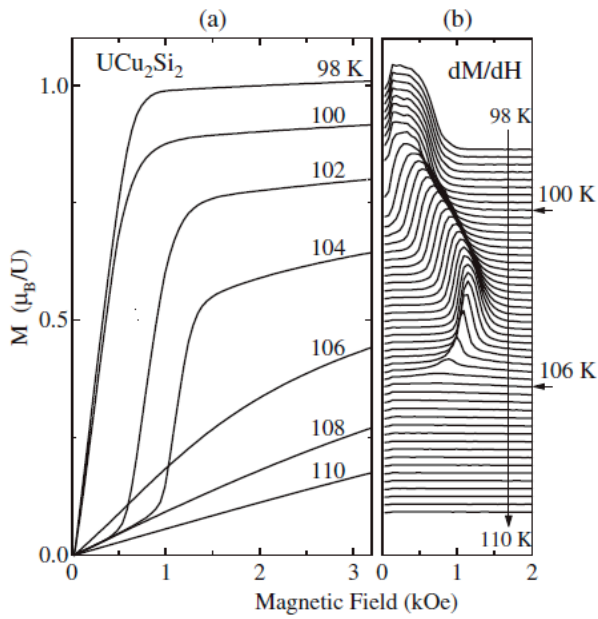


Fig.1 UCu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の磁化の磁場・温度依存性<sup>[2]</sup>  
225×141 mm (72×72 DPI)

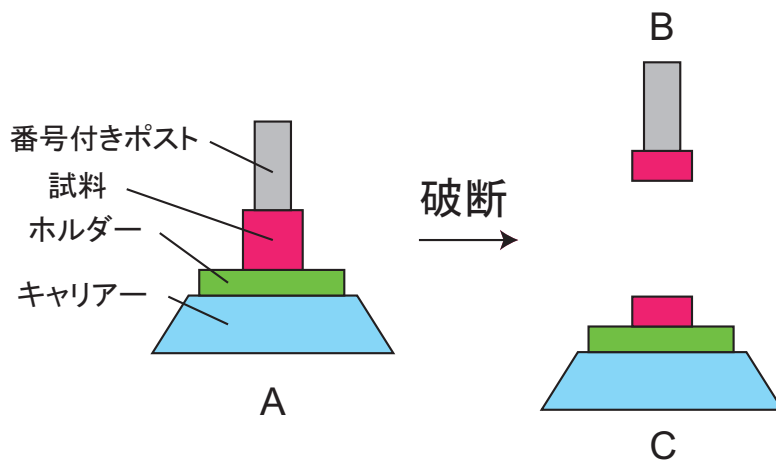


Fig.2 測定試料の準備方法および破断による試料の清浄表面の取得方法の概略  
76×45 mm (300×300 DPI)

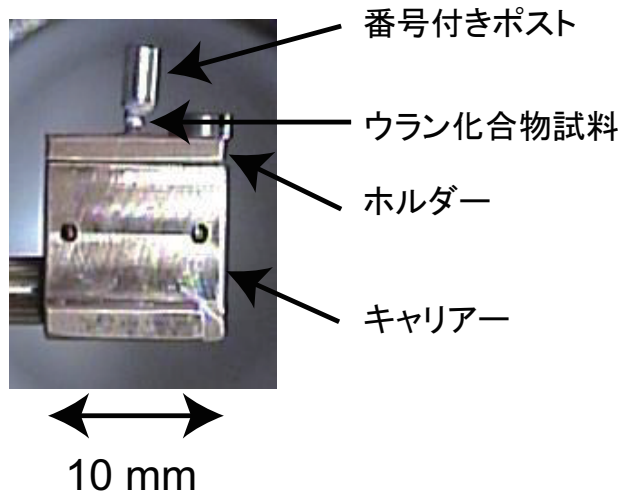


Fig.3 破断前のウラン化合物試料の写真  
73×59 mm (300×300 DPI)

©JASRI

---

(Received: April 14, 2014; Accepted: July 3, 2014; Published: July 10, 2014)