

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 5 日現在

機関番号：24506

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24540382

研究課題名(和文) コンプトン散乱測定を用いたウラン化合物における5f電子状態の解明

研究課題名(英文) Elucidation of 5f Electronic State in Uranium Heavy Fermion Compound through Compton Scattering Experiment

研究代表者

小泉 昭久 (Koizumi, Akihisa)

兵庫県立大学・物質理学研究科・准教授

研究者番号：00244682

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：重い電子化合物URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>における隠れた秩序転移は、未だ秩序パラメータが特定できず、25年以上に渡る謎となっている。この転移に伴う電子構造の変化を明らかにするために、SPring-8の放射光X線を用いたコンプトン散乱実験により、二次元電子運動量密度分布、電子占有数密度分布を観測した。

得られた電子占有数密度は、転移前後で明らかな変化を示しており、バンド構造やフェルミ面構造の再構成を示唆する結果となった。バンド計算より求めた理論的な電子占有数密度との比較から、この変化は、一部のU 5f電子が伝導電子と混成して、局的状態から遍歴的状态に変わったことにより説明される。

研究成果の概要(英文)：The heavy fermion compound URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> shows a second-order phase transition at T<sub>H0</sub>=17.5 K, while the order parameter has not been identified for more than a quarter of century. This unsolved phenomenon is therefore called the hidden-order (HO) transition. In order to clarify the change of electronic structure on the HO transition, we have made Compton scattering experiments with the use of synchrotron X-ray at SPring-8, and obtained 2-dimensional electron momentum densities and electron occupation number densities (EOND).

The 2D-EONDS obtained reflect the change of electronic structure with the HO transition, and therefore indicate the reconstruction of band structure and Fermi surface structure. In comparison with the theoretical EOND derived from a band calculation, the change of EOND is explained as resulting from a sort of localization-delocalization transition where some of U 5f electrons hybridize with conduction electron on the HO transition.

研究分野：放射光物性

キーワード：重い電子系化合物 ウラン化合物 隠れた秩序転移 遍歴・局在性 放射光実験 コンプトン散乱 電子運動量密度 電子占有数密度

### 1. 研究開始当初の背景

$5f$  電子系の重い電子化合物である  $URu_2Si_2$  においては、 $5f$  電子の遍歴・局在性の変化、隠れた秩序、反強磁性秩序、超伝導など多様な物性が観測されており、その本質は  $5f$  電子が担っていると考えられる。磁化率や電気抵抗測定によれば、60K 前後の温度で局在状態から遍歴状態に変化するものと考えられている。更に低温の 17.5K には「隠れた秩序」転移と呼ばれ、25 年以上にわたって未解明の問題がある。これは、転移温度で比熱や磁化率等に明らかな異常が観測されているにも関わらず、未だ秩序パラメータが何なのか明らかになっていない現象である。また、隠れた秩序相においては、反強磁性相との競合あるいは共存が指摘されている。しかしながら、 $5f$  電子の物性への寄与を微視的な観点から明らかにすることは容易ではない。これまでにも、ドハース・ファンアルフェン効果の測定や光電子分光測定によりフェルミ面やバンド構造など微視的な電子状態の研究が行われているが、 $5f$  電子の寄与を含め、電子状態の全体像は明らかにはなっていない。

### 2. 研究の目的

重い電子系化合物  $URu_2Si_2$  の物性を理解するためには、 $5f$  電子の振る舞いを特定する必要がある。本研究ではコンプトン散乱の 2 次元再構成実験・解析を  $URu_2Si_2$  に適用して、それにより得られる運動量密度分布や電子占有数密度を通して、隠れた秩序転移温度の高温側における  $5f$  電子の局在・遍歴性の変化、隠れた秩序転移に伴う電子状態の変化や、隠れた秩序相と競合あるいは共存していると考えられる反強磁性相の電子状態を観測し、この系における電子構造の全体像を明らかにすることを目的とした。また、バンド計算から導かれる理論的な運動量密度分布・電子占有数密度と実験結果を比較することにより、 $URu_2Si_2$  の電子構造に対する  $5f$  電子の寄与を特定することを試みた。

### 3. 研究の方法

コンプトン散乱測定は、大型放射光施設 SPring-8 のビームライン：BL08W を利用して行った。この実験には単結晶試料が必要であるため、引上げ法により試料作成を行った。入射 X 線のエネルギーは、通常  $\sim 105\text{keV}$  であるが、試料にはウランが含まれているので、その蛍光 X 線によるバックグラウンドの増加を避けるため、通常より少し低い入射エネルギーを選択した。試料でコンプトン散乱された X 線をアナライザ-結晶でエネルギー分光することにより高分解能が得られ、分光された X 線は位置敏感型検出器によって計測される。測定温度は、局在から遍歴状態に変わる温度 ( $\sim 60\text{K}$ ) の高温側と低温側、結晶場励起状態の温度 ( $\sim 35\text{K}$ ) 近傍、隠れた秩序転移温度 (17.5K) の近傍 および 高温側と低温側とした。それぞれの温度で、単結晶の

(001)面において、 $[100] \sim [110]$  軸の間で 5 方位のコンプトン・プロファイルを測定した。(100)面における実験の場合には、 $[100] \sim [001]$ 軸の間で 9 方位のプロファイルを測定した。

測定された 5 方位のプロファイルを用いて、直接フーリエ変換法により運動量密度分布を求めた。この方法は、各方位のコンプトン・プロファイルをフーリエ変換することにより逆格子空間における形状因子  $B(r)$  関数を求め、各方位の  $B(r)$  関数を補間することで 2 次元データにし、これを逆フーリエ変換して運動量密度分布を求めるという方法である。更に、得られた運動量密度分布に Lock-Crisp-West 法による解析を適用して、第一ブリルアン・ゾーンにおける電子占有数密度を求めた。これは、運動量密度分布をブリルアン・ゾーンに折り畳むという解析で、原理的には、電子占有数密度を微分して変化率の大きな部分をつなげば、フェルミ面に相当する構造が得られる。

また、 $5f$  電子を遍歴的に扱ったモデルでバンド計算を行い、その結果として得られる波動関数から、バンド毎に (001) 面に射影した 2 次元運動量密度分布、電子占有数密度を求めた。これを実験結果と比較して、電子構造の変化が、どのバンドで起こっているのか、運動量空間やブリルアン・ゾーンのどの位置で起こっているのか、その変化が  $5f$  電子によるものか、を検証した。

### 4. 研究成果

隠れた秩序転移より少し高温の常磁性相と隠れた秩序相で得られた電子占有数密度には明らかな違いが見られ、転移に伴い、バンド構造やフェルミ面の再構成が起こっていることが分かった。ブリルアンゾーンにおける点あるいは Z 点周りでは、ホールによるフェルミ面が増大し、X 点周りでは電子フェルミ面が成長する様子が観測された。常磁性相と隠れた秩序相における電子占有数密度の差は、 $5f$  電子を遍歴的に扱ったモデルによるバンド計算から求めた理論的な電子占有数密度と良く対応しており、この転移には、第 17, 18, 19 バンドに相当するバンド構造の変化が関わっているものと考えられる。バンド計算によると、これらのバンドは  $5f$  電子成分の割合が高く、転移の際に起こる  $5f$  電子と伝導電子の混成が、電子占有数密度の変化に寄与している。従って、 $5f$  電子は、隠れた秩序相で遍歴性が高い状態にあり、常磁性相では、部分的に局在性を残した状態にあると考えられる。また、 $URu_2Si_2$  は補償金属と考えられることから、実験で得られた電子占有数密度を積分することにより、各相における電子数 (ホール数) を見積もることに成功した。その結果は、隠れた秩序相の電子 (ホール) 数が  $0.167 \pm 6/f.u.$  で、常磁性相のそれは、 $0.125 \pm 6/f.u.$  であった。従って、これらの差である  $0.042/f.u.$  が、フェルミ面

の再構成に寄与する電子（ホール）数であると考えられる。この値は、ホール効果の測定から得られているホール数と良い一致を示している。一方、遍歴モデルにおけるバンド計算の結果から得られた電子（ホール）数は、 $0.190/f.u.$  で、その内の  $0.147$  は、 $5f$  電子成分となっており、実験結果と良く対応している。上記の様に、隠れた秩序相と常磁性相の電子構造について、その全体像を捉えることに成功した。今回の結果は、隠れた秩序相で観測されているネマティック状態への変化に相当する電子構造の変化を観測したものと考えられる。尚、この結果については、現在、論文投稿中である。

更に、 $5f$  電子の遍歴・局在性が変化すると考えられる温度（ $\sim 60K$ ）より高温と低温で同様の実験・解析を行い、高温領域では  $5f$  電子の局在性が強く、低温領域では遍歴性が増して行くことが確認されたが、上記の様に、一部に局在性が残っており、隠れた秩序転移温度に近づくにつれ、電子状態はより遍歴的に変化し、転移温度以下の隠れた秩序状態において、 $5f$  電子が最も遍歴的になるものと考えられる。

また、隠れた秩序相と反強磁性相の電子構造における違いの有無を検証するため、 $URu_2Si_2$  中の Ru の一部を Rh で置換した単結晶試料を用いて反強磁性相の電子占有数密度を求めて、隠れた秩序相での結果と比較を行った。これまでに行われていた実験によると、隠れた秩序相と反強磁性相の状態密度には大きな違いが無いことから、電子構造にも大きな違いは無いと考えられていたが、電子占有数密度から観ると、実際には違いがあることが明らかとなった。

#### 5. 主な発表論文等

（研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線）

〔雑誌論文〕(計 1 件)

1) 小泉昭久, 伊藤真義, 櫻井吉晴, 「コンプトン散乱を用いた電子状態研究の新展開」, 日本放射光学会誌, 査読: 無, 25(2012)153-165., <http://www.jssrr.jp/journal/pdf/25/p153.pdf>

〔学会発表〕(計 14 件)

1) 小泉昭久, 山本悦嗣, 芳賀芳範, 久保康則, 伊藤真義, 櫻井吉晴, 「コンプトン散乱で観る  $U(Ru_{0.97}Rh_{0.03})_2Si_2$  の反強磁性相における電子構造: 隠れた秩序相との比較」, 日本物理学会第 70 回年次大会, 2015 年 3 月 22 日, 早稲田大学早稲田キャンパス (東京都新宿区)

2) 小泉昭久, 「X 線 (磁気) コンプトン散乱の基礎と応用」, 物性分光研究会, 2015 年 2 月 7 日, 京都大学化学研究所・宇治おうばくプラザ (京都府宇治市)

3) 小泉昭久, 本山岳, 伊藤真義, 櫻井吉晴, 久保康則, 山村朝雄, 「コンプトン散乱で観た  $URu_2Si_2$  の隠れた秩序転移に伴う電子構造の変化」, 第 28 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 2015 年 1 月 12 日, 立命館大学びわこ・くさつキャンパス (滋賀県草津市)

4) 小泉昭久, 松田和博, 「運動量空間におけるスピン・電子密度科学学会の活動」, SPring-8 シンポジウム 2014, 2014 年 9 月 14 日, 東京大学 弥生講堂 (東京都文京区)

5) 小泉昭久, 本山岳, 山口明, 住山昭彦, 小田祺景, 伊藤真義, 櫻井吉晴, 久保康則, 山村朝雄, 佐藤伊佐務, 「電子運動量密度分布から観た  $URu_2Si_2$  の隠れた秩序転移に伴う電子状態の変化」, 日本物理学会 2014 年秋季大会, 2014 年 9 月 8 日, 中部大学春日井キャンパス (愛知県春日井市)

6) Akihisa KOIZUMI, Gaku MOTOYAMA, Yasunori KUBO, Masayoshi ITOU, Yoshiharu SAKURAI, “Change of electronic structure on the hidden order transition in  $URu_2Si_2$  studied by Compton scattering experiment”, Strongly Correlated Electron Systems (SCES2014), 2014 年 7 月 10 日, グルノーブル (フランス)

7) 小泉昭久, 富石利樹, 本山岳, 山口明, 住山昭彦, 小田祺景, 伊藤真義, 櫻井吉晴, 久保康則, 山村朝雄, 佐藤伊佐務, 「電子運動量密度分布から観た  $URu_2Si_2$  の隠れた秩序相における  $5f$  電子状態」, 日本物理学会第 69 回年次大会, 2014 年 3 月 28 日, 東海大学湘南キャンパス (神奈川県平塚市)

8) 小泉昭久, 芳賀芳範, 山本悦嗣, 久保康則, 大貫惇睦, 伊藤真義, 櫻井吉晴, 「重い電子系化合物  $UPd_2Al_3$  における  $f$  電子の遍歴・局在性の観測: コンプトン散乱実験」, 日本物理学会 2013 年秋季大会, 2013 年 9 月 26 日, 徳島大学 常三島キャンパス (徳島県徳島市)

9) 小泉昭久, 櫻井 浩, 「スピン・電子運動量密度研究会の活動」, SPring-8 シンポジウム 2013, 2013 年 9 月 8 日, 京都大学宇治キャンパスおうばくプラザ (京都府宇治市)

10) Akihisa Koizumi, Gaku Motoyama, Yasunori Kubo, Masayoshi Itou, Yoshiharu Sakurai, “Change of Electronic Structure Associated with the Hidden-Order Transition in  $URu_2Si_2$  Observed by Compton Scattering Experiment”, The 8th International Conference on Inelastic X-ray Scattering, 2013 年 8 月 15 日, メンローパーク (アメリカ)

11) 小泉昭久, 坂田由紀, 井上遼一, 安田明子, 狩野明子, 本山岳, 山口明, 住山昭彦, 小田祺景, 伊藤真義, 櫻井吉晴, 久保康則, 山村朝雄, 佐藤伊佐務, 「コンプトン散乱二次元再構成実験で探る  $URu_2Si_2$  における  $5f$  電子状態の温度変化」, 日本物理学会第 68 回年次大会, 2013 年 3 月 27 日, 広島大学 東広島キャンパス (広島県東広島市)

12) 小泉昭久, 川端一史, 土屋優, 本山岳,

山口明，住山昭彦，小田祺景，伊藤真義，櫻井吉晴，久保康則，山村朝雄，佐藤伊佐務，「コンプトン散乱実験で観る URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> における 5 f 電子の遍歴・局在性の変化」，日本物理学会 2012 年秋季大会，2012 年 9 月 20 日，横浜国立大学 常盤台キャンパス(神奈川県横浜市)

13) Akihisa Koizumi, Gaku Motoyama, Yasunori Kubo, Masayoshi Itou, Yoshiharu Sakurai, “Electronic structure of heavy fermion compound URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> studied by high-resolution Compton scattering experiment”, The Sagamore XVII, IUCr Commission on Charge, Spin and Momentum Densities (招待講演), 2012 年 7 月 16, 第二名水亭 (北海道伊達市)

14) Akihisa Koizumi, Gaku Motoyama, Yasunori Kubo, Masayoshi Itou, Yoshiharu Sakurai, “Study of electronic states in URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> by high resolution Compton scattering experiment”, The 4th International Workshop on the Dual Nature of f-Electrons, 2012 年 7 月 5 日, 姫路・西はりま地場産業センター (兵庫県姫路市)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

小泉昭久

(兵庫県立大学 物質理学研究科 准教授)

研究者番号：00244682

### (2) 研究分担者

( )

研究者番号：

### (3) 連携研究者

久保康則

(日本大学 文理学部 教授)

研究者番号：60117497

本山 岳

(島根大学 総合理工学部 准教授)

研究者番号：20360050