

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 3 年 6 月 3 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K03553

研究課題名(和文) 重い電子系超伝導体の3次元電子状態解明

研究課題名(英文) 3D electronic structures of heavy fermion superconductors

研究代表者

藤森 伸一 (Fujimori, Shin-ichi)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力科学研究所 物質科学研究センター・研究主幹

研究者番号：70343936

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究課題では、重い電子系超伝導体における超伝導メカニズムを明らかにするため、3次元角度分解光電子分光法を用いることにより、その電子状態を実験的に明らかにすることを研究目的とした。スピン三重項超伝導体であることが見出された重い電子系超伝導体UTe<sub>2</sub>に対して3次元角度分解光電子分光実験を適用し、世界に先駆けてその電子状態を明らかにした。また、重い電子系超伝導体であるURu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>やYbRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>の関連物質であるEuRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>等の3次元的な電子構造も明らかにした。これらの結果は、重い電子系における超伝導メカニズムを考える上でも重要な情報であり、その解明に向けて大きく前進することができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究課題によって、UTe<sub>2</sub>等の新奇重い電子系超伝導体の電子状態が初めて明らかとなり、その超伝導機構解明に向けて重要な情報を得ることが出来た。特に重い電子系における超伝導は磁性秩序との共存を示すという特徴があり、超伝導という物理現象そのものを根本的に理解する上でも重要な研究課題である。今後、重い電子系化合物にとどまらず広く超伝導メカニズム一般に関わる理解が進展することが期待できる。

研究成果の概要(英文)：In this research project, we aim to reveal the three-dimensional electronic structure of heavy fermion superconductors in order to clarify the mechanism of its superconductivity by using three-dimensional angle-resolved photoemission spectroscopy. We have applied 3D angle-resolved photoemission spectroscopy to the heavy fermion superconductor UTe<sub>2</sub>, which was found to be a spin-triplet superconductor at the end of 2018, and clarified its electronic structure for the first time in the world. We have also clarified the electronic structure of heavy fermion superconductors such as URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> and EuRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>, which are related to YbRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>. We have also clarified the three-dimensional electronic structure of heavy fermion superconductors such as URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> and EuRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> which is a related material of YbRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>. These results are important information to consider the superconducting mechanism in heavy fermion systems, and we have made a great progress toward the elucidation of its mechanism.

研究分野：強相関電子系

キーワード：強相関電子系 超伝導 放射光分光

## 1. 研究開始当初の背景

超伝導は物性物理学において最も顕著で魅力的な物性物理現象の一つであるが、特に近年、重い電子系において超伝導とは相反する性質である磁性秩序との共存を示す超伝導体や、空間反転対称性を持たない超伝導体など、従来の単純な BCS 理論の枠組みでは理解できないエキゾチックな超伝導体が多く見出されている。超伝導状態において、電子は電子間引力によってクーパー対を形成し、フェルミ面上にはエネルギーギャップが形成されるが、ギャップ関数  $\Delta(k)$  は超伝導を特徴づける秩序変数であり、電子間引力の起源を理解する上で最も重要な物理パラメータである。特に、クーパー対の対称性が非  $s$  波であるエキゾチック超伝導体においては、ギャップ関数はギャップが運動量空間中において部分的に消失するノード(節)構造の対称性によって特徴づけられる。現在までのところ、重い電子系超伝導体において、ギャップ関数の対称性は熱力学的物理量や核磁気共鳴などの間接的な実験に基づいて推論されている状況にあるが、ギャップ関数はフェルミ面の形状に依存するため、その根本的な理解のためには 3 次元なフェルミ面形状の知見が必要不可欠である。

## 2. 研究の目的

本申請課題では、重い電子系超伝導体における超伝導メカニズムを明らかにするため、申請者らが SPring-8 BL23SU において開発した 3 次元角度分解光電子分光法 (3D-ARPES) をこれらの化合物に対して適用し、その 3 次元なフェルミ面と、フェルミ順位近傍のバンド構造を実験的に明らかにすることを研究目的とした。従来の ARPES 研究では捉えきれなかった 3 次元電子状態を実験的に明らかにし、バンド計算などの理論と比較を行うことによって電子構造の詳細な情報を得ることによって、これらの化合物の超伝導機構の解明に繋げることを目指した。

## 3. 研究の方法

この研究目的を達成するために、重い電子系化合物の高品位単結晶に対して 3D-ARPES 法を適用した。特に本研究課題では微小な単結晶の測定を行う必要があるため、微小領域を詳細に測定する技術の確立が必要となる。本課題では正面型試料観察用カメラを開発し、光電子分光装置上流に設置した。ARPES 実験では劈開表面に対して測定を行うが、劈開表面は一般的に不均一である場合が多い。特に本研究で研究対象とする化合物は 3 次元な物質であるため、劈開表面上で平坦な部分を選択して測定を行う必要がある。放射光と同軸方向から試料を観察することが可能となり、表面上の放射光照射位置を選別したり、一定に保持することが可能となった。

## 4. 研究成果

### (1) 新規超伝導体 $UTe_2$ の電子状態

研究課題開始後の 2018 年 12 月に  $UTe_2$  がスピン三重項超伝導体であることが報告され、世界的にも競争的な研究が進められた。本研究課題においても 3D-ARPES によって  $UTe_2$  の電子状態を明らかにすることを目的として、迅速に研究体制の構築を行った。特に同様の研究が米国等の研究グループでも進行してため、試料輸送から実験・データ

解析に至るまでの準備を迅速に進めた。さらに実験技術においてもこれまでの経験を最大限に活用し、短期間のビームタイムで効率的に精度の高い実験データを得ることに成功し、世界で初めて  $\text{UTe}_2$  の電子状態を詳細に明らかにすることに成功した。実験の結果得られた角度分解光電子分光スペクトルとバンド計算の結果の比較を図 1 に示す。実験の結果、明瞭なバンド分散を観測され、計算との比較を行ったところ、大まかなバンド構造が計算によって再現されるものの、フェルミ順位近傍の電子構造は電子相関効果によりバンド幅が狭くなり、また計算では予測されていない非コヒーレント成分が存在していることが明らかとなった。さらに共鳴光電子分光実験により  $\text{U } 5f$  部分状態密度の導出を行って、バンド計算の結果と比較したところ、 $\text{U } 5f$  電子は遍歴的な性質を持っているものの、同時に強い電子相関効果も存在していることが明らかとなった。実験の計画から実施、データ解析、論文投稿までを三か月以内に完了し、2019 年 8 月に世界に先駆けて論文として発表することに成功した[1]。また、内殻光電子分光によって  $\text{UTe}_2$  におけるウラン原子価数状態を明らかにし [2]、さらにその電子構造を記述する理論モデルの構築にも貢献した[3]。

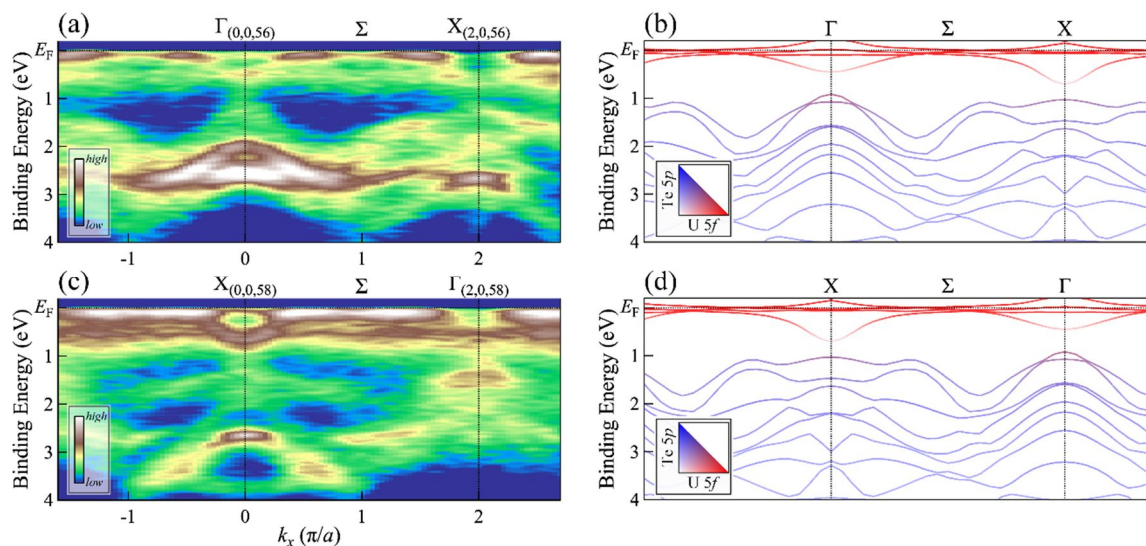


図 1  $\text{UTe}_2$  の角度分解光電子分光スペクトル (左図) とバンド計算 (右図)

## (2) 強相関 $4f$ 電子系物質の電子状態

重い電子系超伝導体関連物質である  $\text{Eu}$  化合物に対して 3D-ARPES 実験を行い、その電子状態を明らかにした。特に極低温で反強磁性転移と超伝導転移を示す  $\text{Yb}$  化合物  $\text{YbRh}_2\text{Si}_2$  において、反強磁性転移に伴う電子状態の変化を明らかにするため、 $\text{Yb}$  を  $\text{Eu}$  で置き換えた反強磁性を示す  $\text{Eu}$  化合物  $\text{EuRh}_2\text{Si}_2$  に対して 3D-ARPES 実験を行った[4]。 $\text{YbRh}_2\text{Si}_2$  と  $\text{EuRh}_2\text{Si}_2$  は同じ結晶構造を持ち、なおかつ反強磁性転移温度がそれぞれ 70mK と 24.5 K であるため、 $\text{EuRh}_2\text{Si}_2$  では実験的に反強磁性転移の効果を観測することが可能である。実験の結果、 $\text{EuRh}_2\text{Si}_2$  における反強磁性転移に伴う電子状態の変化を観測することに成功した。図 2 に反強磁性転移によるフェルミ面の変化を示す。これは反強磁性転移による電子状態の変化を電子分光によって明確に捉えた、これまで前例のない結果である。この結果は、 $\text{YbRh}_2\text{Si}_2$  の電子状態においても反強磁性転移に伴う電子状態変化が起こっていることを示唆しており、超伝導状態にある  $\text{YbRh}_2\text{Si}_2$  の電子状態を理解する上でも重要な結果である。今後、 $4f$  電子系における磁性の発現機構、さらには磁性と隣接した超伝導機構の解明に繋がることが期待できる。

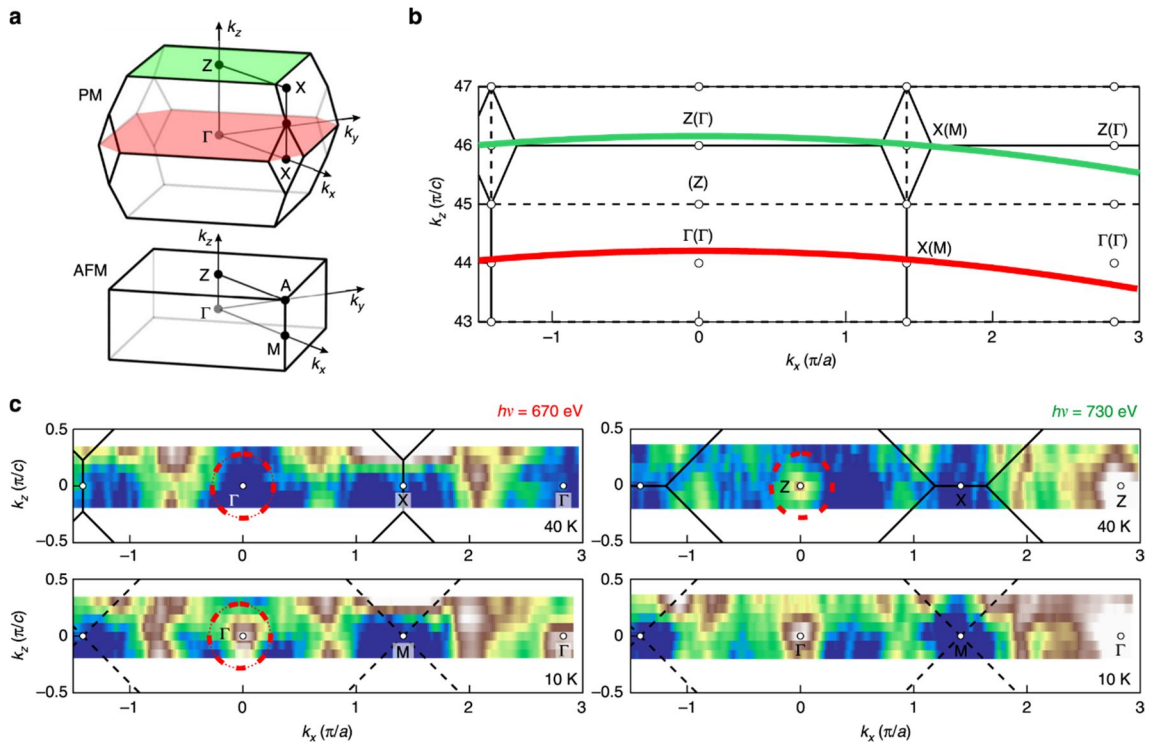


図 2  $\text{EuRh}_2\text{Si}_2$  の角度分解光電子スペクトルの温度変化。常磁性相(40 K) と反強磁性相(10 K)ではフェルミ面の形状が変化している。

## 参考文献

- [1] Shin-ichi Fujimori, Ikuto Kawasaki, Yukiharu Takeda, Hiroshi Yamagami, Ai Nakamura, Yoshiya Homma, Dai Aoki, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 103701 (2019).
- [2] Shin-ichi Fujimori, Ikuto Kawasaki, Yukiharu Takeda, Hiroshi Yamagami, Ai Nakamura, Yoshiya Homma, Dai Aoki, J. Phys. Soc. Jpn. **90**, 015002 (2021).
- [3] Alexander B Shick, Shin-ichi Fujimori, Warren E Pickett, Phys. Rev. B **103**, 125136 (2021).
- [4] M. Güttler, A. Generalov, S. Fujimori, K. Kummer, A. Chikina, S. Seiro, S. Danzenbächer, Y. M. Koroteev, E. V. Chulkov, M. Radovic, M. Shi, N. C. Plumb, C. Laubschat, J. W. Allen, C. Krellner, C. Geibel, D. V. Vyalikh, Nat. Commun. **10**, 796 (2019).

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計12件（うち査読付論文 12件 / うち国際共著 3件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Fujimori Shin-ichi, Kawasaki Ikuto, Takeda Yukiharu, Yamagami Hiroshi, Nakamura Ai, Homma Yoshiya, Aoki Dai	4. 巻 88
2. 論文標題 Electronic Structure of UTe <sub>2</sub> Studied by Photoelectron Spectroscopy	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 103701 ~ 103701
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.88.103701	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Kawasaki Ikuto, Fujimori Shin-ichi, Takeda Yukiharu, Yamagami Hiroshi, Iha Wataru, Hedo Masato, Nakama Takao, Onuki Yoshichika	4. 巻 100
2. 論文標題 Electronic states of EuCu <sub>2</sub> Ge <sub>2</sub> and EuCu <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> studied by soft x-ray photoemission spectroscopy	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 035111 ~ 035111
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.100.035111	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Sakamoto Shoya, Tu Nguyen Thanh, Takeda Yukiharu, Fujimori Shin-ichi, Hai Pham Nam, Anh Le Duc, Wakabayashi Yuki K., Shibata Goro, Horio Masafumi, Ikeda Keisuke, Saitoh Yuji, Yamagami Hiroshi, Tanaka Masaaki, Fujimori Atsushi	4. 巻 100
2. 論文標題 Electronic structure of the high-TC ferromagnetic semiconductor (Ga,Fe)Sb: X-ray magnetic circular dichroism and resonance photoemission spectroscopy studies	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 035204 ~ 035204
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.100.035204	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Fujimori Shin-ichi, Kobata Masaharu, Takeda Yukiharu, Okane Tetsuo, Saitoh Yuji, Fujimori Atsushi, Yamagami Hiroshi, Haga Yoshinori, Yamamoto Etsuji, Onuki Yoshichika	4. 巻 99
2. 論文標題 Manifestation of electron correlation effect in 5f states of uranium compounds revealed by 4d-5f resonant photoelectron spectroscopy	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 035109 ~ 035109
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.99.035109	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Guttler M., Generalov A., Fujimori S. I., Kummer K., Chikina A., Seiro S., Danzenbacher S., Koroteev Yu. M., Chulkov E. V., Radovic M., Shi M., Plumb N. C., Laubschat C., Allen J. W., Krellner C., Geibel C., Vyalikh D. V.	4. 巻 10
2. 論文標題 Divalent EuRh <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> as a reference for the Luttinger theorem and antiferromagnetism in trivalent heavy-fermion YbRh <sub>2</sub> Si <sub>2</sub>	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 796
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-019-08688-y	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Usachov D. Yu., Tarasov A. V., Schulz S., Bokai K. A., Tupitsyn I. I., Poelchen G., Seiro S., Caroca-Canales N., Kliemt K., Mende M., Kummer K., Krellner C., Muntwiler M., Li Hang, Laubschat C., Geibel C., Chulkov E. V., Fujimori S. I., Vyalikh D. V.	4. 巻 102
2. 論文標題 Photoelectron diffraction for probing valency and magnetism of 4f-based materials: A view on valence-fluctuating EuIr <sub>2</sub> Si <sub>2</sub>	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 205102 ~ 205102
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.205102	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Kawasaki Ikuto, Kobata Masaaki, Fujimori Shin-ichi, Takeda Yukiharu, Yamagami Hiroshi, Nakamura Ai, Iha Wataru, Hedo Masato, Nakama Takao, Onuki Yoshichika	4. 巻 89
2. 論文標題 Electronic Structure of Trivalent Compound EuPd <sub>3</sub> Studied by Soft X-ray Angle-resolved Photoemission Spectroscopy	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 044704 ~ 044704
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.89.044704	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Kataoka Noriyuki, Tanaka Masashi, Hosoda Wataru, Taniguchi Takumi, Fujimori Shin-ichi, Wakita Takanori, Muraoka Yuji, Yokoya Takayoshi	4. 巻 33
2. 論文標題 Soft x-ray irradiation induced metallization of layered TiNCI	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 035501 ~ 035501
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-648X/abbbc3	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Takeda Takahito, Sakamoto Shoya, Araki Kohsei, Fujisawa Yuita, Anh Le Duc, Thanh Tu Nguyen, Takeda Yukiharu, Fujimori Shin-ichi, Fujimori Atsushi, Tanaka Masaaki, Kobayashi Masaki	4. 巻 102
2. 論文標題 Evolution of Fe 3d impurity band state as the origin of high Curie temperature in the p-type ferromagnetic semiconductor (Ga,Fe)Sb	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 245203 ~ 245203
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.245203	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Fujimori Shin-ichi, Kawasaki Ikuto, Takeda Yukiharu, Yamagami Hiroshi, Nakamura Ai, Homma Yoshiya, Aoki Dai	4. 巻 90
2. 論文標題 Core-Level Photoelectron Spectroscopy Study of UTe2	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 015002 ~ 015002
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.90.015002	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Shick Alexander B., Fujimori Shin-ichi, Pickett Warren E.	4. 巻 103
2. 論文標題 UTe2: A nearly insulating half-filled $j=5/2$ 5f3 heavy-fermion metal	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 125136 ~ 125136
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.103.125136	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Fujimori Shin-ichi, Takeda Yukiharu, Yamagami Hiroshi, Yamamoto Etsuji, Haga Yoshinori	4. 巻 -
2. 論文標題 Electronic structure of URu2Si2 in paramagnetic phase: Three-dimensional angle resolved photoelectron spectroscopy study	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Electronic Structure	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/2516-1075/abfd20	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 4件 / うち国際学会 5件）

1. 発表者名 Shin-ichi Fujimori
2. 発表標題 ARPES study of heavy-fermion uranium superconductors
3. 学会等名 Spectroscopies in Novel Superconductors (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Shin-ichi Fujimori
2. 発表標題 Electronic Structure of UTe <sub>2</sub> Studied by Photoelectron Spectroscopy
3. 学会等名 International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 藤森伸一
2. 発表標題 光電子分光によるUTe <sub>2</sub> の電子状態
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 藤森伸一
2. 発表標題 Electronic structures of strongly correlated uranium compounds studied by three-dimensional ARPES
3. 学会等名 International workshop on dual nature of f-electrons (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年



1. 発表者名 藤森伸一
2. 発表標題 超伝導ウラン化合物のバンド構造とフェルミ面
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Shin-ichi Fujimori
2. 発表標題 Soft X-ray Synchrotron Radiation Spectroscopy Study of Actinide Compounds
3. 学会等名 KSIEC Annual Meeting; 4th Generation Synchrotron Light for Nuclear Technology and Other Industrial Applications (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Shin-ichi Fujimori
2. 発表標題 Electronic structures of uranium compounds studied by photoelectron spectroscopy
3. 学会等名 MRS spring meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
ドイツ	Technische Universitat Dresden	IFW Dresden	Max Planck Institute	他1機関
米国	University of California	University of Michigan		
チェコ	Czech Academy of Science			
スペイン	Donostia International Physics Center	IKERBASQUE		
スウェーデン	Lund University			
フランス	European Synchrotron Radiation Facility			
スイス	Paul Scherrer Institute			
ロシア連邦	Saint Petersburg State University	Tomsk State University		
デンマーク	Technical University of Denmark			