

機関番号：82110

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2009～2010

課題番号：21740271

研究課題名(和文) 角度分解光電子分光によるウラン化合物の隠れた秩序状態および磁性状態の解明

研究課題名(英文) Angle resolved photoelectron spectroscopy study of hidden order and magnetic states in uranium compounds

研究代表者

藤森 伸一 (FUJIMORI SHIN-ICHI)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・研究副主幹

研究者番号：70343936

研究成果の概要(和文)：

本研究課題では、ウランを構成元素として含む化合物において観測されている磁性状態、および物性物理学における25年来の謎である URu_2Si_2 における「隠れた秩序状態」の機構を明らかにするため、物質の電子状態を明らかにすることができる角度分解光電子分光を用いてその電子状態を解明した。その結果、「隠れた秩序状態」を担っている「5f 電子」は結晶内を自由に動き回ることができる「遍歴状態」にあることが明らかとなった。これは「隠れた秩序状態」を解明する上において最も基礎的な情報であり、その解明に向けて大きく前進することができた。

研究成果の概要(英文)：

The ordered states such as magnetism in uranium based compounds have been one of the central issues in condensed matter physics. Especially, the hidden order state observed in URu_2Si_2 has been attracting much attention for more than 25 years. In the present study, we have performed angle-resolved photoelectron spectroscopy, which is a powerful tool to understand electronic structure of materials, to understand the origin of those ordered states. We have found that U 5f electrons, which are responsible for those ordered states, have an itinerant character. This is very important basis for the understanding of these ordered states.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,500,000	450,000	1,950,000
2010年度	1,200,000	360,000	1,560,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,700,000	810,000	3,510,000

研究分野：数物系化学

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード：強相関係、光物性

1. 研究開始当初の背景

ウラン化合物は、超伝導・強磁性・反強磁性およびそれらの競合・共存など、多様で複雑な物性を示す。特に、磁性などの秩序状態と共存・競合する超伝導は重い電子系化合物

の最も特徴的な性質であり、そのミクロな起源を理解することは、超伝導という物理現象を総合的に理解する上でも非常に重要な位置を占めている。しかしながら、これら超伝導と密接に関連している秩序状態に関して

は、帯磁率や抵抗率などのマクロな物理量の測定が主であり、電子構造などのミクロな情報はほとんど得られていない。特に URu_2Si_2 において発現している隠れた秩序状態の起源は長年研究にも関わらずその起源は未だに理解されていないが、その一つの理由はこれらの化合物における電子所帯が解明されていないことにある。とくに転移温度上下における電子状態の直接観測は、隠れた秩序状態の解明に向けて決定的な情報になると考えられる。

2. 研究の目的

本課題では、重い電子系ウラン化合物 URu_2Si_2 における隠れた秩序状態、およびウラン化合物超伝導体における磁性状態の性質を明らかにすることを目的として、物質の電子状態を直接的に観測することが可能な角度分解光電子分光(ARPES)を用い、これらウラン化合物の電子状態の直接観測を行う。理論モデルとの比較を行い、磁性状態や隠れた秩序状態を担っている $5f$ 電子を直接的に観測し、さらにはバンド計算などの理論との比較を行うことによってそのメカニズムに迫る。

3. 研究の方法

この研究目的を達成するために、 f 電子に起因するバルク電子状態を観測可能な軟 X 線放射光を用いた ARPES (SX-ARPES)に加え、超高エネルギー分解能($< 1 \text{ meV}$)が得られる低エネルギーレーザー光を用いた ARPES (LE-ARPES)実験を低温(5 K 以下)においてウラン化合物に適用することを目指した。それぞれの手法のメリットを組み合わせることによって、1 eV オーダーの広範囲なバンド構造からフェルミ面近傍の 1 meV オーダーの微細な電子構造を実験的に導出し、結果を理論モデルと比較することによって隠れた秩序状態、および超伝導発現の舞台となっている磁性状態における電子状態を明らかにする。特に URu_2Si_2 における隠れた秩序状態や磁性状態を直接観測するために、軟 X 線光電子分光実験における試料温度の低温化を実施する。SPRING-8 BL23SU 光電子分光装置において試料マニピュレータの改造を行い、小型化したマニピュレータ先端部と試料ホルダーを開発して熱容量を減少させて低温化を達成する。また、試料周りを 2 重のシールドで覆うことによって外部からの熱放射の影響を排除する改造も行う。これらの改造によって 6 K 程度の最低到達低温が達成し、 URu_2Si_2 の隠れた秩序転移温度(17.5 K)よりも十分に低温での測定が可能となっただけでなく、より低温における磁気秩序状態の観測も可能とする。

4. 研究成果

(1) URu_2Si_2 に対する SX-ARPES 実験

URu_2Si_2 に対する SX-ARPES 実験を行って、その 3 次元的なバンド構造とフェルミ面を明らかにした。特に常磁性状態における $5f$ 電子が作るバンド構造とフェルミ面を初めて決定した。その結果、隠れた秩序状態を担っている $5f$ 電子は、1 eV 程度のエネルギー分散を持ってフェルミ面を形成していることが明らかとなった。3 次元的なバンド構造及びフェルミ面は、 $5f$ 電子を遍歴として取り扱ったバンド計算によって定性的に説明されることが明らかとなった。この結果は、隠れた秩序状態が遍歴的な $5f$ 電子の描像に基づいて理解されることを示しており、既存の理論枠組みに大きな制限を加えることとなった。一方で、SX-ARPES 実験で隠れた秩序状態における測定も行ったものの、スペクトルには明確な変化を捉えることはできなかった。その一方で LE-ARPES 実験に関しては 2009 年の早い段階で国内外の他グループによって先行研究が行われてしまったため、本研究課題では実行することができなかった。その結果によると、隠れた秩序状態における電子構造変化は数 meV 程度であることが明らかとなった。従って、SX-ARPES 実験で隠れた秩序転移に伴う電子状態を捉えられなかったことは、実験のエネルギー分解能($\sim 100 \text{ meV}$)に起因していると考えられる。

(2) $\text{U}(\text{Ru}_{0.97}\text{Rh}_{0.03})_2\text{Si}_2$ に対する SX-ARPES 実験

URu_2Si_2 の隠れた秩序状態をさらに理解するため、関連物質であり反強磁性秩序を示す Rh ドープ系である $\text{U}(\text{Ru}_{0.97}\text{Rh}_{0.03})_2\text{Si}_2$ に対する軟 X 線角度分解光電子分光実験を行った。その結果、その電子状態が URu_2Si_2 とほとんど同じであることが明らかとなった。このことは、 $\text{U}(\text{Ru}_{0.97}\text{Rh}_{0.03})_2\text{Si}_2$ における反強磁性秩序ベクトル $\mathbf{Q}=(1,0,0)$ が、母物質である URu_2Si_2 における隠れた秩序状態における秩序ベクトルと一致していることを示唆している。また、反強磁性転移温度 $T_N \sim 10 \text{ K}$ 前後での測定を行ったが、電子状態の変化は非常に小さいことを明らかになった。これは URu_2Si_2 に対する結果同様に、電子状態の変化は数 meV 程度のオーダーであり、SX-ARPES のエネルギー分解能では捉えられなかったためであると考えられる。

(3) 強磁性体 URhGe の SX-ARPES 実験

ウラン化合物における超伝導と密接に関連した磁性状態を理解するため、常圧下で強磁性と超伝導が共存する URhGe に対する SX-ARPES 実験を行った。3 次元的なバンド構造とフェルミ面を実験的に導出した。この化合物は結晶構造の対称性が低いために多くのバンドから構成されており、実験的にそ

れらを分解するのは困難であったものの、少なくとも $5f$ 電子の寄与が強い幾つかのバンドがフェルミ面近傍に位置しており、フェルミ面を形成していることが明らかとなった。大まかなバンド構造は $5f$ 電子を遍歴として取り扱ったバンド計算によって再現されており、遍歴的な取り扱いが有効であることが明らかとなった。また、低温化した試料マニピュレータを利用し、強磁性転移 ($T_C = 9.7$ K) 前後における電子状態の変化を測定した。その結果、スペクトルには微小ながらも強磁性転移に伴う変化が観測された。特にフェルミ準位近傍に位置する $5f$ 電子の寄与が強いバンドが強磁性転移によってシフトすることが明らかとなった。このことは、この化合物における強磁性は遍歴的な $5f$ 電子が担っていることを示している。

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 5 件)

- ① Shin-ichi Fujimori, Takuo Ohkochi, Tetsuo Okane, Yuji Saitoh, Atsushi Fujimori, Hiroshi Yamagami, Yoshinori Haga, Etsuji Yamamoto, and Yoshichika Onuki, Angle resolved photoemission study on uranium compounds, IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering **9**, 012045-1 - 012045-8 (2010), DOI: 10.1088/1757-899X/9/1/012045. (査読有)
 - ② I. Kawasaki, S.-I. Fujimori, Y. Takeda, T. Okane, A. Yasui, Y. Saitoh, H. Yamagami, Y. Haga, E. Yamamoto and Y. Ōnuki, Electronic structure of URu_2Si_2 in paramagnetic phase studied by soft x-ray photoemission spectroscopy, J. Phys.: Conf. Series **273**, 012039-1 - 012039-4 (2011), DOI: 10.1088/1742-6596/273/1/012039 (査読有)
 - ③ Ikuto Kawasaki, Shin-ichi Fujimori, Tetsuo Okane, Akira Yasui, Yuji Saitoh, Hiroshi Yamagami, Yoshinori Haga, Etsuji Yamamoto, and Yoshichika Ōnuki, Band structure and Fermi surface of URu_2Si_2 studied by soft x-ray angle-resolved photoemission spectroscopy, Phys. Rev. B **83**, 235121-1 - 235121-6 (2011), DOI: 10.1103/PhysRevB.83.235121. (査読有)
 - ④ Ikuto Kawasaki, Shin-ichi Fujimori, Tetsuo Okane, Akira Yasui, Yuji Saitoh, Hiroshi Yamagami, Yoshinori Haga, Etsuji Yamamoto, and Yoshichika Ōnuki, Itinerant U $5f$ Nature in Antiferromagnet $U(Ru_{0.97}Rh_{0.03})_2Si_2$: Soft X-ray Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy, J. Phys. Soc. Jpn. **81**, 0124710-1 - 0124710-5 (2011), DOI: 10.1143/JPSJ.80.124710. (査読有)
 - ④ Shin-ichi Fujimori, Takuo Ohkochi, Ikuto Kawasaki, Akira Yasui, Yukiharu Takeda, Tetsuo Okane, Yuji Saitoh, Atsushi Fujimori, Hiroshi Yamagami, Yoshinori Haga, Etsuji Yamamoto, Yoshifumi Tokiwa, Shugo Ikeda, Takashi Sugai, Hitoshi Ohkuni, Noriaki Kimura and Yoshichika Ōnuki, Electronic Structure of Heavy Fermion Uranium Compounds Studied by Core-Level Photoelectron Spectroscopy, J. Phys. Soc. Jpn. **81**, 014703-1 - 014703-9 (2012), DOI: 10.1143/JPSJ.81.014703. (査読有)
- [学会発表] (計 15 件)
- ① Shin-ichi Fujimori, Angle Resolved Photoemission Study on Uranium Compounds, ACTINIDES-2009, 2009 年 7 月 16 日 (San Francisco, USA) (招待講演)
 - ② Shin-ichi Fujimori, Soft X-ray ARPES Study on Heavy Fermions, CORPES '09, 2009 年 7 月 21 日 (Zürich, Switzerland) (口頭発表)
 - ② Shin-ichi Fujimori, Electronic Structure of UN:ARPES study, ICM-2009, 2009 年 7 月 30 日 (Karlsruhe, Germany) (口頭発表)
 - ④ 藤森伸一, UPd_2Al_3 および UNi_2Al_3 の常磁性状態におけるフェルミ面, 日本物理学会第 64 回秋季大会, 2009 年 9 月 25 日 (熊本大学) (口頭発表)
 - ⑤ 藤森伸一, 軟 X 線 ARPES によるアクチノイド化合物の電子状態, 日本物理学会第 65 回年次大会, 2010 年 3 月 21 日 (岡山大学) (シンポジウム講演)
 - ⑥ 川崎郁斗, 藤森伸一他, URu_2Si_2 の軟 X 線光電子分光, 日本物理学会第 65 回年次大会, 2010 年 3 月 21 日 (岡山大学) (口頭発表)
 - ⑦ Shin-ichi Fujimori, Nature of $5f$ electronic state in heavy Fermion superconductor UPd_2Al_3 studied by photoelectron spectroscopy, The Third International Workshop on the Dual Nature of f electrons, 2010 年 5 月 25 日 (Dresden, Germany) (招待講演)
 - ⑧ Shin-ichi Fujimori, Electronic structure of heavy Fermion uranium compounds studied by core-level photoelectron spectroscopy, International Conference on Heavy Electrons 2010, 2010 年 9 月 19 日 (首都大) (口頭発表)
 - ⑨ Ikuto Kawasaki, Shin-ichi Fujimori et al., Electronic structure of URu_2Si_2 studied by soft x-ray angle-resolved photoemission spectroscopy, International Conference on Heavy Electrons 2010, 2010 年 9 月 19 日 (首都大) (ポスター発表)

- ⑩ 川崎郁斗, 藤森伸一他, 軟 X 線角度分解光電子分光による URu₂Si₂ のバンド構造とフェルミ面 II, 日本物理学会 2010 年秋季大会, 2010 年 9 月 25 日 (大阪府立大) (口頭発表)
- ⑪ Shin-ichi Fujimori, Soft X-ray Spectroscopy for Uranium Compounds at SPring-8: Photoelectron Spectroscopy, The 1st ASRC international workshop: New Approach to the Exotic Phases of Actinide Compounds Under Unconventional Experimental Conditions, 2011 年 2 月 17 日(東海村) (招待講演)
- ⑫ Shin-ichi Fujimori, Electronic structure of heavy Fermion uranium compounds studied by core-level photoelectron spectroscopy, Actinides XAS 2011, 2011 年 3 月 2 日 (SPring-8) (ポスター講演)
- ⑬ Ikuto Kawasaki, Shin-ichi Fujimori et al., Photoemission Spectroscopy of URu₂Si₂, Actinides XAS 2011, 2011 年 3 月 2 日 (SPring-8) (ポスター講演)
- ⑭ Shin-ichi Fujimori, Electronic Structure of Heavy Fermion Uranium Compounds: Soft X-ray Photoelectron Spectroscopy Study, International workshop on heavy fermions, 2011 年 11 月 24 日 (大阪大学) (招待講演)
- ⑮ 藤森伸一、角度分解光電子分光による強相関ウラン化合物の電子状態研究、北東北国立 3 大学連携推進研究プロジェクト研究会、2011 年 11 月 27 日 (岩手大学) (招待講演)

[図書] (計 1 件)

- ① 藤森伸一、光電子分光法による重い電子系の電子状態研究、物性研究 **97**, 637-674 (2012) (<http://ci.nii.ac.jp/naid/110008898025>)

[産業財産権]

- 出願状況 (計 0 件)
- 取得状況 (計 0 件)

[その他]

なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

藤森 伸一 (FUJIMORI SHIN-ICHI)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・研究副主幹

研究者番号：70343936