

低温超高分解能三次元 ARPES で見た URu₂Si₂ の隠れた秩序： BESSY II 1³ ARPES ステーション利用体験記

吉田力矢

東京大学物性研究所 〒277-8581 千葉県柏市柏の葉 5-1-5

脇田高徳

岡山大学理学部附属界面科学研究施設 〒700-8530 岡山県岡山市北区津島中 3-1-1

横谷尚睦

岡山大学理学部附属界面科学研究施設 〒700-8530 岡山県岡山市北区津島中 3-1-1

要旨

固体の物性研究に重要な役割を果たしている実験手法のひとつとして、放射光を用いた角度分解光電子分光がある。この実験技術は近年においても著しい発展を遂げており、新しいコンセプトで建設されたビームラインやエンドステーションが登場している。本稿では、ドイツの放射光施設 BESSY II に設置された“1³ (One-Cubed) ARPES ステーション”において、我々が最近行った URu₂Si₂ の低温超高分解能光電子分光実験について紹介する。URu₂Si₂ は 17.5 K において二次相転移を起こすが、その相転移の正体は物質の発見から四半世紀以上たった現在でも謎のままであり、「隠れた秩序」問題として知られている。我々が 1³ ARPES ステーションでの実験に至った経緯や、現地の様子も交えながら、放射光を用いることで初めて明らかになった URu₂Si₂ の電子状態を紹介する。

1. はじめに

放射光は様々な分野の科学に対して恩恵をもたらしているが、固体の分光実験においても非常に有用なツールである。その放射光を用いた固体分光実験のひとつに、角度分解光電子分光 (ARPES) がある。角度分解光電子分光は固体のバンド構造を直接観測できる手法であり、過去 10 年の間にも大きな進歩を遂げた。実験室環境では、希ガス放電管や真空紫外レーザーを光源に用いた低温測定が行われており、近年ではエネルギー分解能が 100 μ eV 以下、試料温度 1 K 程度の測定が達成されている¹⁾。しかし、実験室における光電子分光は高精度の測定が可能である一方、使用できる励起光のエネルギーに限られるという制約もある。励起光エネルギーが固定される光電子分光測定では、試料表面垂直方向におけるバンド構造の波数依存性は測定できず、三次元的な電子構造を持つ物質においては問題となる。それに対し、放射光を用いた光電子分光では波数空間を三次元的にスキャンすることが可能な反面、極低温かつ数 meV の精度で測定することはまだまだ一般的ではない。

近年、ドイツの放射光施設において 1³ (One-Cubed) ARPES ステーションという新しいエンドステーションが建設された。このエンドステーションの名前は、(1)光の分

解能、(2)電子アナライザーの性能、(3)最低到達温度の目標がそれぞれ ~ 1 meV, ~ 1 meV, ~ 1 K という“1 が 3 つ続き”のコンセプトが由来であり、APPLE II 型のアンジュレーター光源及び高性能のビームラインから得られる放射光を ³He を使ったクライオスタットと組み合わせることで、放射光を用いた光電子分光としては非常に高精度かつ低温の測定を可能にしている。この度、我々の研究グループは 1³ ARPES ステーションを日本のグループとして初めて利用し、URu₂Si₂ という物質における低温超高分解能光電子分光実験を行った。URu₂Si₂ は 17.5 K において未知の二次相転移を示すが、その正体 (= 秩序変数) は物質の発見から四半世紀以上たった現在でも謎のままであり、これは「隠れた秩序」問題として知られている²⁾。本稿では、1³ ARPES ステーションの利用にあたる経緯や現地の様子なども交えながら、放射光を用いる事で初めて明らかになった URu₂Si₂ における電子状態の変化を紹介する³⁾。

2. 実験に至る経緯

経緯は 2009 年頃に遡る。当時、我々は東京大学物性研究所の超高分解能レーザー光電子装置を使って、URu₂Si₂ の測定を行っていた (URu₂Si₂ の結晶構造を Fig. 1(a), 対応するブリルアンゾーンを Fig. 1(b) に示す)。この物質は

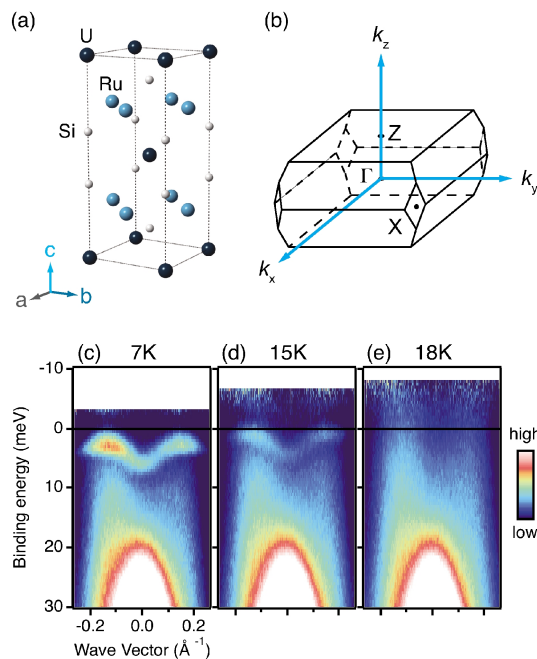


Fig. 1 (Color online) (a) Crystal Structure of URu₂Si₂. (b) Body-centered tetragonal Brillouin zone of URu₂Si₂. (c)–(e) Temperature dependence of ARPES intensity maps for URu₂Si₂ measured along the [100] direction over the temperature range of 7–18 K. The intensity maps have been normalized by the resolution-convoluted Fermi functions.

17.5 K に未知の二次相転移を持つ事は先に述べたが、その相転移に伴う電子状態の変化を捉えることが重大な課題であった。ところが、想定される変化のエネルギースケールは数 meV と小さいため、もし何かしらの変化があるとしても、非常に高精度の測定が要求される。従って、非常に高いエネルギー分解能を得る事ができ、かつ共同利用に提供されていたレーザー光電子を最初を選択したのは、我々にとって自然な流れであった。

レーザー光電子分光によって得られた結果は、後の研究展開に大きく関わっている⁴⁾。Fig. 1(c)–(e)は、面内[100]方向、7–18 K の温度範囲においてレーザー光電子分光装置で測定した光電子の強度マップである。重要なのはフェルミ準位から結合エネルギー $E_B \sim 10$ meV までの範囲で、17.5 K より下の温度 (7–15 K) で幅の狭い準粒子バンドがはっきりと観測されたことである。この準粒子バンドは転移温度より上 (18 K) では観測されていない。また、温度降下に伴いバンド全体がその強度を増やしながら高結合エネルギー側にシフトする様子も見られている。[110]方向においても同様の結果が得られ、更に Rh ドープにより隠れた秩序を抑制した試料では重いバンドが観測されなかったことから、重い準粒子バンドは隠れた秩序相転移を特徴付ける電子状態の変化である事が分かった。

何も状態が存在しない領域に相転移温度以下で新たなバンドが出現する事の解釈として、他の波数位置に存在するバンドの折り返しが提案されていた。もしこの解釈が正し

ければ、転移前の常磁性相において、折り返し前のバンドが他の波数位置に観測されるはずである。この折り返しの有無は URu₂Si₂ における自発的対称性の破れと関っており、実験的に重要な問題である。二次相転移では何らかの対称性が自発的に破れるはずであるが、どのような対称性が破れるかという情報は秩序変数を決定する上で欠かす事ができない。最近、磁気トルクの測定により回転対称性の破れが報告されたが⁵⁾、他の対称性が破れているかどうかについては明らかではなかった。実際、走査トンネル分光では a–b 面内に電子状態の周期性が変化の様子は見られていなかったが⁶⁾、中性子散乱⁷⁾や量子振動の実験⁸⁾からは c 軸方向における並進対称性の破れが間接的に示唆されていた。また、我々よりも少し前にヨーロッパのグループから報告されていた He I 放電管を使った高分解能測定⁹⁾では、我々のレーザー光電子分光と共通する部分も多くあるが、転移温度より高温側での振る舞いに違いがあった。我々が用いた VUV レーザーと He I では光のエネルギーが違うので、単純な比較はできない。またレーザー (6.994 eV) の低エネルギー領域では、URu₂Si₂ に対して自由電子終状態モデルを適用できるかが定かではなく、 k_z のどの辺りを測定しているのかを推測するに留まっていた。こうした経緯は、励起エネルギーを変えられる放射光を用いた測定への大きな動機となった。

もうひとつの重要な動機は、隠れた秩序相転移において波数空間の何処でエネルギーギャップが形成されるかという問題である。間接的な実験では、エネルギーギャップの形成は昔から示唆されていた。最近の走査トンネル分光でもエネルギーギャップが観測されていたが、面直方向の情報は積分されており、波数空間の何処でギャップが開くかについては更に調べる余地が残っていた^{6,10)}。加えて、走査トンネル分光で観測されたようなエネルギーギャップが、トンネル分光と相補的な実験手法である角度分解光電子分光では観測されておらず^{4,9,11,12)}、両者の不一致についても疑問が残っていた。このエネルギーギャップ問題について知見を得るには、転移温度の前後 (常磁性相と隠れた秩序相) において、電子状態を詳細に比較する事が重要であった。この目的にも、励起エネルギーを変えられる放射光を用いた測定が重要である。

放射光を利用した測定の重要性が分かっても、乗り越えなければならない大きなハードルが二つあった。ひとつは装置性能の問題である。観測したい変化は数 meV 程度なので、エネルギー分解能が不十分では意味が無いし、測定温度も 17.5 K の相転移温度に対して十分低い温度が得られなければならない。勝算ラインとしては、分解能が 5 meV 程度、測定温度も 10 K 以下といったところが必要であった。放射光を用いた光電子分光測定において、これらの性能が得られるビームラインは一部しかない。もう一つのハードルは、ウラン化合物の取り扱いである。光電子分光の実験では、清浄表面を得るために試料を真空チェン

パー中で劈開することが広く行われている。しかしウランのような放射性物質では、破片等を含めて試料を全て回収する必要があり、劈開機構や真空チェンバーの構造によって制約を受ける。また放射性物質の持ち込みに対する規制もある。

以上のようなハードルを全て乗り越える事ができたのが、BESSY IIにある 1^3 ARPESステーションであった。

3. ドイツへの道

我々にはコネのようなものは無かったので、目星をつけたビームラインの担当者に直接メールを送り、装置性能やウランの取り扱いについて問い合わせる所から開始した。装置性能については、求めるものに近いビームラインは国内にも存在したが、ウランの取り扱いが問題になるケースがほとんどであった。またウラン試料を日本国外に持ち出すことはできないので、国外で実験をする場合には現地で試料を調達する必要があった。

我々にとって幸運だったのは、EUという一つの枠組みの中で試料提供者と最適なビームラインを見つけられた事である。試料については、非常に質の高いものをフランスの研究グループから提供してもらえ事になった。また、 1^3 ARPESステーションの装置性能(詳細は後述)は申し分ないものであり、劈開後の試料も破片を含めて回収できるような構造になっていた。ウラン化合物の持ち込みも許されており、フランスからドイツへの試料輸送も、EUという枠組みのおかげで可能であることが分かった。

装置やウランの持ち込みについて確認した後は、一般ユーザーとして課題申請を行う事にした。課題申請にあたっては、やり取りをしたビームライン担当者に“申請書の例を送ってこないか”と聞いたところ、親切にも複数送ってくれた。我々にとってBESSY IIでは初めての課題申請だったので、申請書の例はとても参考になった。

我々の課題申請は幸運にも採択されたわけであるが、課題が通った後に浮き彫りとなった問題もあった。実際にフランスの試料提供者からドイツへ試料を送ってもらう段階になって、受け入れ側に責任者を立てるよう要求された。ドイツ国外からやって来る我々が責任者になる訳にもいかず、現地でホスト役になってくれる人を探す必要ができたのだが、コネも無い状態で始めた事であり、この問題には困り果てた。ところが、この問題を相談したビームラインの担当者が受け入れ先になる事を申し出てくださり、なんとか乗り越える事ができた。

以上のハードルを全てクリアし、念願の実験が行えたわけである。我々の意志だけではなく、多くの方々の協力がなければ決して実現しなかった実験である。

今回の経験を通して、情報への“近づき易さ”がいかに重要かも痛感した。試料の特殊性を除外して考えても、エンドステーションや課題申請に関する情報を集めるのは大

変だったように思う。例えば、課題申請書のフォーマットひとつにしても、その内容は常時公開されているものではなく、本来ならば申請用のウェブサイトが開いている期間しかその全容を知る事は出来なかった。従って、先に述べたビームライン担当者の善意がなければ、我々は十分な準備が出来なかったかもしれない。国内外における国際的な共同研究がさらに発展して行く中では、情報がいかに“近づき易い”状態で提供されているかということが研究の進展・展開に大きな影響を与え得る大切なポイントとして、今後ますます重要になって行くと考えられる。

4. 1^3 ARPESステーションの概要

BESSY IIは、旧東ベルリン南部の研究施設が立ち並ぶ再開発地域の一角にある。円形の蓄積リングの周長は240 mで、187 mのPFよりやや大きい印象である。蓄積リングからの光の取り出し口には全部で16のセクションがあり、我々が実験を行ったビームラインUE112-PGM2bは13番目のセクションに位置する。「UE112」というのは磁石列の周期長が112 mmのAPPLE II型のアンジュレーター(全長4.2 m)を意味し、円偏光(楕円偏光)および任意の角度の直線偏光を発生させることができる¹³⁾。偏光の切り換えは光エネルギーの選択まで含めて約3.5分間で行える¹⁴⁾。UE112から出てくる光はトロイダル集光鏡の切り換えによって2つの分光器、PGM1およびPGM2に振り分けられ、PGM2側は下流でさらにPGM2aとPGM2bに分岐される。つまり全部で3つのビームラインが建設されている。ユーザービームタイムでは、このうちの2つを12時間交替で利用する形で運用される(時間割はユーザー間の話し合いによって弾力的に変更可能)。PGMは平面回折格子分光器(plane grating monochromator)を意味し、PGM1は20-700 eV、PGM2は4-250 eVの光を利用できる(但し、PGM2b側は分光器の後に円筒鏡が一つ多いので、推奨されているエネルギー範囲がPGM2a側よりも若干狭い)。PGM1側には常設のエンドステーションはなく、ビームタイムごとに装置が持ち込まれて実験が行われる。

分光器PGM2は、平面鏡と平面回折格子を組み合わせた可変偏角斜入射型の分光器で、(1)高輝度、(2)高分解能、または(3)効率良く高次光強度を低減する設定を適宜選択できる^{14,15)}。さらに平面鏡の配置と回折格子の変更により直入射型の分光器(NIM)としても使用可能であるが、現状での使用は稀らしい。10-100 eVの光については斜入射の配置でエネルギー分解能1 meV以下が達成されているからであろう。回折格子の下流側では円筒鏡の切り換えにより上述の通りPGM2aとPGM2bに分岐される。PGM2a側のエンドステーションには 1^3 (One-Cubed) ARPESとは別のARPES装置「 1^2 (One-Squared) ARPES」が常設されおり、Scienta R8000アナライザーを装備する。建設

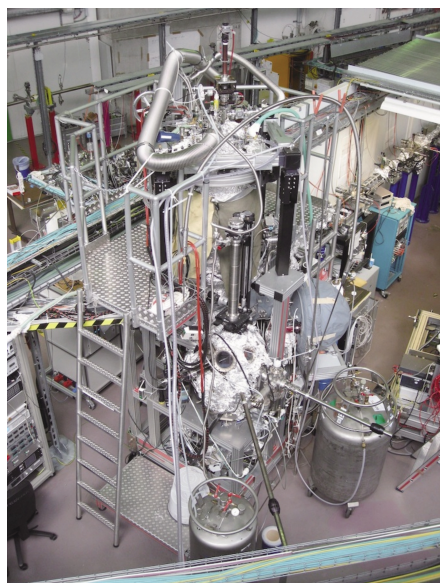


Fig. 2 (Color online) A picture of 1³ ARPES endstation at BESSY II.

は比較的最近で、試料の回転自由度が高く、フェルミ面のマッピングに適している。

PGM2b 側の常設エンドステーションが、今回我々が実験を行った 1³ ARPES ステーションであり、3 年ほど前から共同利用実験が開始されている¹⁴⁾。Scienta R4000 アナライザーが装備され、³He クライオスタットにより 1 K 付近まで試料を冷却できる（温度計の表示では 0.8~0.9 K が報告されているが、試料上ではケース毎に状況が違う事を注意されたい）。装置の全高はクライオスタットを含め 4 m 程度あって間近で見ると大きい（Fig. 2）。装置のほぼ上半分を占めるのがジャニス・リサーチ社とライプニッツ固体材料研究所（IFW, ドレスデン）が共同開発した ³He クライオスタットである。1 K 以下の低温を得るには断熱された容器中の液体 ³He を減圧する方法がとられる。³He を用いるのは、1 K での ³He の飽和蒸気圧が ⁴He に比べて格段に高いためである。但し ³He は希少かつ高価であるため循環させる方式が採られ、循環する ³He の液化には液体 ⁴He が用いられる。よってクライオスタットは液体 ⁴He の長時間保存に必要な液体 N₂ 溜（~77 K）、液体 ⁴He 溜（~4.2 K）、および ³He 循環系から構成されると概説できる。やや詳述すると、液体 ⁴He の一部は減圧室（1 K 溜）に送られて 1 K まで冷やされ、ここで ³He が液化される。液化した ³He は液体 ³He 溜に溜まり、減圧されて 1 K 以下へと冷却され、液体 ³He 溜に熱的に接触しているコールドフィンガーおよびそこに固定された試料も冷却される、という仕組みである。周囲（室温~300 K）からの熱輻射の遮蔽には、温度の異なる 3 重の輻射シールド（内側から 1 K, 4.2 K, 77 K）が設置されコールドフィンガー全体を覆っている。但し、これらの輻射シールドには試料に放射光を当てるための円形の穴（直径~2

mm）、および光電子を取り出すための縦長の長方形の穴（~40×4 mm）が開いている。従って、これらの穴から入り込む熱輻射、および放射光照射による熱負荷（~50 μW）を補償する冷却能力が必須となるが、液体 ³He 溜の減圧能力を強化することで解決されている。実際、コールドフィンガーへの 5 mW のレーザー照射でも~100 mK の温度上昇に抑えられることが確認されている¹⁴⁾。試料ホルダーをコールドフィンガーに取り付ける作業では、一時的に輻射シールド外にコールドフィンガーを移動させて室温の試料ホルダーを装着することになる。しかし温度は 40 K 前後に上昇するだけで、作業終了後は 40 分以内に最低温に達する。時間割がナイトシフト（19時から翌朝 7 時まで）の場合、15時~16時に液体 N₂ を容量の 100%、および液体 ⁴He を容量の 30% 充填しておく、翌朝 7 時まで最低温での実験が可能であった。

静電半球型電子エネルギーアナライザーの Scienta R4000 は検出する光電子に対して大きな取り込み角を持っていることが特徴の一つである。最大 30°での測定が可能であり、電子レンズの設定を変えると取り込み角 14°および 7°で測定することもできる（但し、7°の設定はこの装置独自のカスタマイズによる^{14,16)}）。取り込み角 30°での角度分解能は 0.2°以下と見積もられている。全エネルギー分解能は、アナライザーおよび光のエネルギー分解能、試料温度がそれぞれ 1 meV, 1 meV, 1 K のとき約 1.4 meV と計算されるものの、現在観測された最良値は約 2 meV である（余分な幅の広がりの原因は現在のところ不明^{14,16)}）。通常の測定では計測時間等の制約から全エネルギー分解能 3.5~4 meV（分光器の出口スリット幅 40 μm、アナライザーのスリット幅 200 μm）の設定で使用されることが多い。我々の実験では、光のエネルギーが 19~51 eV のとき全エネルギー分解能は 4~7 meV であった。試料は鉛直軸方向の周りに -30°~45°の間で 0.25°の精度で回転させることができる。また試料の面内角度は、コールドフィンガーへの試料ホルダーの取り付け時に約 5 度の精度で任意に設定できる。光のサイズは試料位置で 100 μm×100 μm 程度である。測定では試料（1 mm×1 mm 程度）に光を当て、かつその位置をアナライザーの電子レンズの焦点位置に一致させねばならないが、輻射シールドが存在するために肉眼や CCD カメラで試料位置の確認はできず、アナライザーの制御ソフトでシグナル強度を確認しながら最適位置を探さねばならない。この位置合わせがこの実験のもっとも難しいポイントの一つであったが、徐々に装置に慣れるに従って短時間で調整できるようになった。

5. 1³ ARPES ステーションで観測された URu₂Si₂ の電子構造

この項では、放射光を用いた低温超高分解能三次元 ARPES によって明らかとなった URu₂Si₂ の電子状態につ

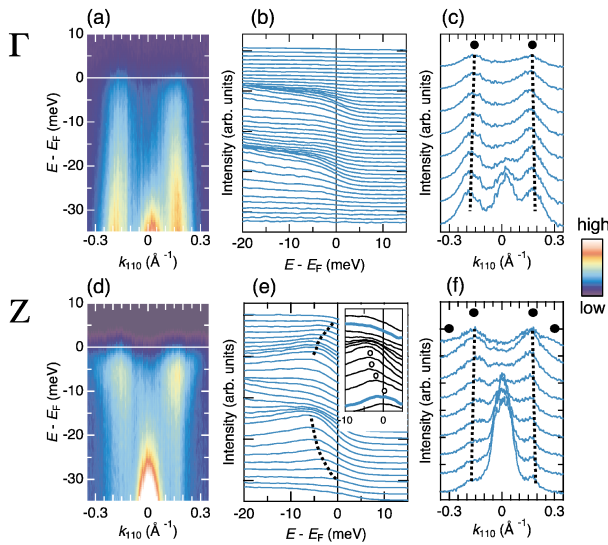


Fig. 3 (Color online) High-resolution ARPES data measured along the Γ -X direction for the paramagnetic state of URu₂Si₂ (20 K). (a) ARPES intensity map measured using 19-eV photons. (b) The energy distribution curves (EDCs) corresponding to the data in (a). (c) The momentum-distribution curves (MDCs) corresponding to (a). (d) ARPES intensity map measured using 34-eV photons. (e) EDCs corresponding to (d). The inset shows the EDCs near k_F ; the EDCs have been normalized by the resolution-convoluted Fermi function. (f) MDCs corresponding to (d).

いて紹介する。

5.1 常磁性相における電子状態

2節で述べたように、c軸方向における電子状態の波数依存性が重要だったので、当該方向において対称性の高い点である Γ 点とZ点の二つに注目した。**Fig. 3(a)–(f)**に常磁性相20 K、 Γ -X方向[110]に対するURu₂Si₂の光電子スペクトルを示す。 Γ 点とZ点を測定するために、それぞれ19 eV、34 eVの励起エネルギーを使用している¹⁷⁾。**Fig. 3(a)–(c)**に示す Γ 点近傍のデータでは、強度マップ、エネルギー分布関数 (EDC)、運動量分布関数 (MDC)のそれぞれにおいて、フェルミ準位を横切るホールポケットと、フェルミ準位より下に頂点を持つバンドが観測されており、後者のバンドは先行研究により表面状態であることが示されている^{9,18)}。前者のホールポケットについても**Fig. 3(d)–(f)**に示すZ点近傍でも観測され、他の k_z 位置においても波数依存性がないという事実から¹⁹⁾、表面由来のものである事が示唆される。

これらの構造とは別に、Z点近傍のデータにおいて、波数が大きくなるのに従いフェルミ準位に向かって分散する電子的なバンドが新たに観測された。このバンドは非常に大きな有効質量を持っており、フェルミ関数で規格化したEDC (**Fig. 3(e)**の挿入図)において、 $k_{110} = 0.30 \text{ \AA}^{-1}$ 付近でフェルミ準位を横切っている。この波数位置は、フェルミ準位上のMDCで観測されたピークとも対応が良い。更

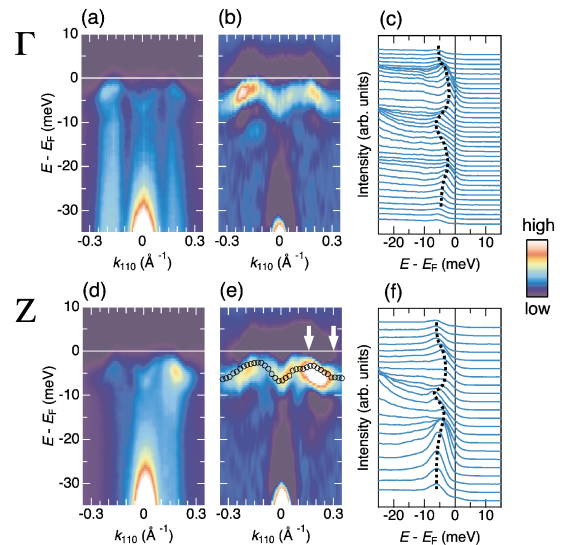


Fig. 4 (Color online) High-resolution ARPES data measured along the Γ -X direction for the hidden-order state of URu₂Si₂ (2 K). (a) ARPES intensity map measured using 19-eV photons. (b) The second-derivative map corresponding to (a). (c) The energy-distribution curves corresponding to (a). (d) ARPES intensity map measured using 34-eV photons. (e) The second-derivative map corresponding to (d). Black circles show the EDC-derived peak positions of the ‘M-shaped’ band and the position of k_F are indicated by the arrows. (f) The energy-distribution curves corresponding to (d). The broken lines in (c) and (f) are guides for the eye. Note that the spectra were measured with circular polarization.

にこの電子ポケットは k_z 依存性を持つ事から、バルクの電子構造である事が示唆される。本測定で観測された電子ポケットの存在は、放射光を用いた超高分解能光電子分光によって初めて明らかになったものである。

5.2 隠れた秩序相への変化

隠れた秩序相においては、光電子スペクトルの様子が大きく変化する。**Fig. 4(a)–(f)**に隠れた秩序相2 K、 Γ -X方向[110]におけるURu₂Si₂の光電子スペクトルを示す。常磁性相のスペクトルと決定的に異なる点は、フェルミ準位近傍にレーザー光電子分光でも観測された様な重いバンドが見られた事である。この重いバンドはフェルミ準位を横切ってはならず、 Γ 点、Z点の両方において観測された。Z点のデータに注目すると、このバンドは $k_{110} \sim 0.16 \text{ \AA}^{-1}$ 付近で頂点を持ち、常磁性相における $k_F \sim 0.30 \text{ \AA}^{-1}$ 付近ではフェルミ準位から離れる方向に分散していることから、電子ポケットにおけるギャップの形成が示唆される。また、 Γ 点とZ点のそれぞれで観測された重いバンドは形状が一致するため、同じ起源を有する事が考えられる。

Fig. 5(a)–(d)に電子状態の温度変化を詳細に測定したデータを示す。**Fig. 5(a)**、**5(b)**は19 eVの励起光を用いて測定したスペクトルで、それぞれ $k_{110} = 0 \text{ \AA}^{-1}$ 、 $k_{110} = 0.16$

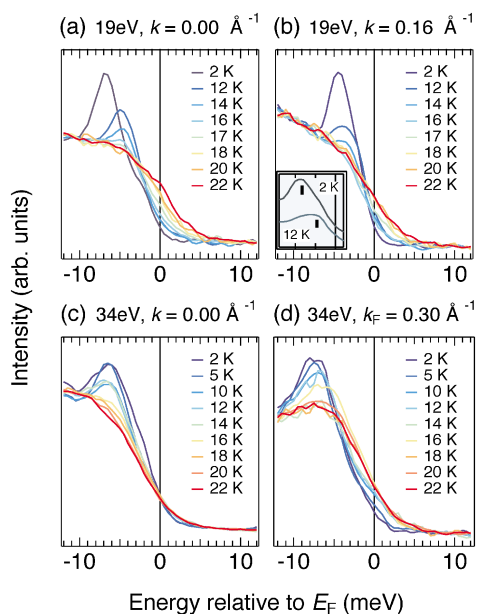


Fig. 5 (Color online) The EDCs measured above and below the hidden-order temperature. (a) The EDCs at $k=0 \text{ \AA}^{-1}$ for 19 eV. (b) The EDCs at $k=0.16 \text{ \AA}^{-1}$ for 19 eV. The EDCs at 2 K and 12 K are also presented in the inset after being normalized by the resolution-convoluted Fermi functions. (c) The EDCs at $k=0 \text{ \AA}^{-1}$ recorded using 34-eV photons. (d) The EDCs at $k_F=0.30 \text{ \AA}^{-1}$ for 34 eV.

\AA^{-1} における EDC である。どちらの波数においても、ピークが転移温度以下で成長し、高結合エネルギー側にシフトする様子が見られている ($k_{110}=0.16 \text{ \AA}^{-1}$ については、**Fig. 5(b)**の挿入図にあるフェルミ関数で規格化した 2 K と 12 K における EDC も参照)。この 19 eV における観測結果は、レーザー光電子分光で観測された振る舞いと同様のものであり、 Γ 点近傍では転移温度以下で重いバンドが出現することを表している。それに対して、**Fig. 5(c)**、**5(d)**に示す 34 eV の励起光で測定した EDC では、電子ポケットに対応するピークがシャープになるだけでなく、 k_F におけるスペクトルのエッジがシフトしており、電子ポケットにおけるギャップ形成を支持している。また、相転移における U 5*f* 電子の関与を示唆する比熱測定²⁰⁾との対応から、転移温度の前後で変化する電子ポケットの起源は U 5*f* である事が示唆される。これらの k_z に依存した電子状態の温度変化も、放射光を用いる事により初めて明らかとなった実験事実である。

5.4 隠れた秩序における並進対称性の破れとギャップ形成

本実験で得られた電子状態の変化を、**Fig. 6**として模式的に示す。本実験では、常磁性相において Z 点近傍に電子ポケットが観測されたが、これは local density approximation (LDA) を用いたバンド計算では予測されていない。従って、LDA はフェルミ準位近傍における電子状態

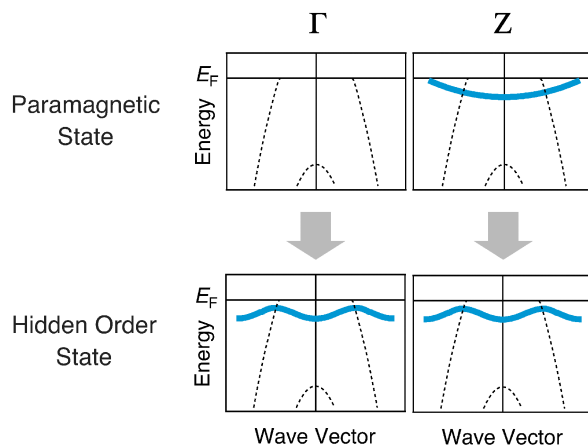


Fig. 6 Schematic description of the electronic states observed in the present study.

の全てを説明するのに十分では無い事が示唆される。また電子ポケットで観測されたギャップは、隠れた秩序相におけるバンドの頂点と常磁性相におけるフェルミ波数 ($\sim 0.30 \text{ \AA}^{-1}$) の位置が一致しないという特徴を持つ。この不一致は電子・ホール非対称的なギャップに見られる特徴であり、銅酸化物高温超伝導体における擬ギャップなどでも議論されている²¹⁾。また、相転移後の秩序が十分発達した温度領域では、 Γ 点と Z 点における電子構造が等価になっている事が示唆される。これは秩序相における並進対称性の破れを示唆しており、中性子散乱²²⁾、隠れた秩序のリエントラント現象²³⁾、圧力により誘起される反強磁性相と隠れた秩序相におけるフェルミ面の一致⁸⁾などに対応する。

以上の結果は、URu₂Si₂ の隠れた秩序における今後の理論的な研究に大きな指針を与えることが期待される。電子・ホール非対称的なギャップの形成は今回観測された有効質量の重い電子バンドと伝導バンドの混成という描像で説明できるが、これまでの実験では混成の相手方となる伝導バンドは特定されていない。光電子放出の行列要素効果による説明も可能であるが、そもそも常磁性相において伝導バンドを必要としないモデルなども提案されており²⁴⁾、今後の課題である。また今回観測された並進対称性の破れは c 軸方向に秩序ベクトルを持つ理論モデルと対応し、秩序変数に直接関係する情報として重要である。

6. おわりに

本稿では、¹³ ARPES ステーションの利用にあたる経緯や現地の様子なども交えながら、放射光を用いる事で初めて明らかになった URu₂Si₂ における電子状態の変化について紹介した。本研究の成果は、放射光光電子分光における分解能や冷却性能の向上が新しい研究の展開を生み出した例としても意味があるだろう。実際、¹³ ARPES ステ

ジョン及びビームラインの実力はまさに“異次元”であり、非常に驚いたのが正直な感想である。今後も日本が競争力を保つためには、国内にも同様の（またはそれ以上の）インフラが必要であると強く感じた次第である。

本研究とは直接関係ないが、最近の放射光を用いた光電子分光としてスピン分解測定²⁵⁾や時間分解測定²⁶⁾なども急速に発展を遂げている。これらの新しい技術が、今後の物性研究に対して果たす役割にも興味を持たれる。

謝辞

我々の I³ ARPES ステーションにおける研究は、試料提供者である青木大氏、J. Flouquet 氏、そして BESSY II の関係者であった T. Kim 氏、A. Varykhalov 氏、E. Rienks 氏のご協力がなければ実現する事は出来ませんでした。芳賀芳範氏、大貫惇睦氏には、試料提供者を探す上でご協力頂き、また町田一成氏、星野晋太郎氏にはデータに関する議論をして頂きました。山本遇哲氏には、本原稿の校正を引き受けて頂きました。以上の方々に、この場をお借りしてお礼を申し上げます。BESSY III³ ARPES ステーションにおける実験は、課題番号 2011_2_110195 と 2012_2_120346 のもとで行われました。本研究は、文部科学省科学研究費補助金新学術領域（研究領域提案型）「重い電子系の形成と秩序化」、日本学術振興会科学研究費補助金、日本学術振興会特別研究員制度の補助を受けて行われたものです。

参考文献

- 1) K. Okazaki *et al.*: Science **337**, 1314 (2012).
- 2) 最近のレビューとして、J. A. Mydosh and P. M. Oppeneer: Rev. Mod. Phys. **83**, 1301 (2011).
- 3) R. Yoshida *et al.*: Sci. Rep. **3**, 2750 (2013).
- 4) R. Yoshida *et al.*: Phys. Rev. B **82**, 205108 (2010).
- 5) R. Okazaki *et al.*: Science **331**, 439 (2011).
- 6) A. R. Schmidt *et al.*: Nature **465**, 570 (2010).
- 7) A. Villaume *et al.*: Phys. Rev. B **78**, 012504 (2008).
- 8) E. Hassinger *et al.*: Phys. Rev. Lett. **105**, 216409 (2010).
- 9) A. F. Santander-Syro *et al.*: Nat. Phys. **5**, 637 (2009).
- 10) P. Aynajian *et al.*: P. Natl. Acad. Sci. **107**, 10383 (2010).
- 11) S. Chatterjee *et al.*: Phys. Rev. Lett. **110**, 186401 (2013).
- 12) F. L. Boariu *et al.*: Phys. Rev. Lett. **110**, 156404 (2013).
- 13) J. Bahrtdt *et al.*: Proceedings of EPAC08, Genoa, Italy, 2222 (2008).
- 14) S. V. Borisenko: Synchrotron Rad. News **25**:5, 6 (2012).
- 15) R. Follath *et al.*: J. Synchrotron Rad. **5**, 769 (1998).
- 16) S. V. Borisenko *et al.*: J. Vis. Exp. **68**, 50129 (2012).
- 17) Denlinger *et al.*: J. Electron Spectrosc. **117**, 347 (2001).
- 18) F. L. Boariu *et al.*: J. Electron Spectrosc. **181**, 82 (2010).
- 19) Ref. 3 の Supplementary Information 参照。
- 20) W. Schlabit *et al.*: Z. Phys. B Con. Mat. **62**, 171 (1986).
- 21) M. Hashimoto *et al.*: Nat. Phys. **6**, 414 (2010).
- 22) A. Villaume *et al.*: Phys. Rev. B **78**, 012504 (2008).
- 23) D. Aoki *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 053701 (2009).
- 24) S. Hoshino *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **82**, 044707 (2013).
- 25) 奥田太一：放射光 **20**, 159 (2007).
- 26) S. Yamamoto and I. Matsuda: J. Phys. Soc. Jpn. **82**, 021003 (2013).

著者紹介



吉田力矢

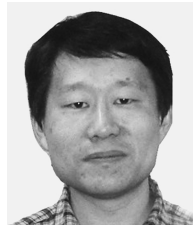
東京大学物性研究所 日本学術振興会特別研究員 (PD)

E-mail: ryoshida@issp.u-tokyo.ac.jp

専門：固体物理学

【略歴】

2009年4月日本学術振興会特別研究員 (DC1)。2012年3月岡山大学大学院自然科学研究科博士後期課程修了。博士(理学)。2012年4月より現職。



横谷尚睦

岡山大学大学院自然科学研究科 教授

E-mail: yokoya@cc.okayama-u.ac.jp

専門：光電子固体物性

【略歴】

1997年3月東北大学大学院理学研究科物理学専攻博士課程修了。博士(理学)。1997年4月日本学術振興会特別研究員 (PD)。1998年10月東京大学物性研究所助手、2004年4月財団法人高輝度光科学研究センター軟X線チームリーダー・主幹研究員。2005年4月より現職。



脇田高德

岡山大学 特任講師

E-mail: wakita@cc.okayama-u.ac.jp

専門：表面物理学

【略歴】

2001年3月東北大学大学院理学研究科物理学専攻博士課程後期3年の課程卒業。博士(理学)。2001年4月東京大学物性研究所 COE 研究員。2002年11月高輝度光科学研究センター協力研究員。2005年11月岡山大学理学部界面科学研究施設非常勤研究員。同大学院自然科学研究科特任助教を経て2012年4月より現職。

Emergence of the hidden-order state in URu₂Si₂ studied by low-temperature ultrahigh-resolution three-dimensional ARPES: Our experinence at BESSY II 1³ ARPES station

Rikiya YOSHIDA Institute for Solid State Physics, The University of Tokyo,
Kashiwa 277-8581, Japan

Takanori WAKITA Research Laboratory for Surface Science,
Okayama University, Okayama 700-8530, Japan

Takayoshi YOKOYA Research Laboratory for Surface Science, Okayama University,
Okayama 700-8530, Japan

Abstract Angle-resolved photoemission with synchrotron radiation has played a pivotal role in the resaerch of condensed matter physics. This experimetnal technique has evolved even in recent years and promoted the development of 'new-concept' endstations at several synchrotron facilities. In this article, we introduce our recent low-temperature, ultrahigh-resolution photoemision experiment on URu₂Si₂ performed at "1³ (One-cubed)" ARPES station of BESSY II in Germany. Our study is related to the so-called "hidden-order" problem; while URu₂Si₂ shows a second-order phase transition at 17.5 K, the nature of the order parameter is still unknown despite years of considerable research. Along with our motivation for performing an experiment at 1³ ARPES station and the current situation of the endstation, we will describe our findings, which can only be elucidated by the use of synchrotron radiation.