

令和元年6月19日現在

機関番号：37115

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2018

課題番号：16K13839

研究課題名(和文)多秩序系に発現する位相欠陥を伴う電子軌道テクスチャの実験的解明

研究課題名(英文) Experimental study of electron-orbital texture around topological defects occurring in multi-order system

研究代表者

井野 明洋 (INO, Akihiro)

久留米工業大学・工学部・教授

研究者番号：60363040

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,700,000円

研究成果の概要(和文)：多秩序系における位相欠陥の成り立ちを実験的に解明するため、偏光依存角度分解光電子分光の実験技術を発展させて、波数空間における電子軌道の分布を直接観測する手法の開発に取り組みました。鉄系超伝導物質に混在する二種類の結晶配向領域を可視化して、電子液晶転移に伴う局所的な電子軌道の変化を直接観測により決定しました。また、銅酸化物高温超伝導体の二重層分裂したバンドの劇的な偏光依存性を発見し、電子軌道の対称性の波数分布についての知見が得られました。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、走査顕微鏡の超高分解能角度分解光電子分光と、励起光を縦偏光から横偏光へ、左円偏光から右円偏光へと連続的に変化させる偏光依存性測定の組み合わせが実現可能であり、強力な実験手法になることが実証されました。電子軌道成分の波数分布をマッピングする直接的な実験情報は、多秩序系における相転移現象を左右する電子の状態と位相欠陥について、他の手法では得られない強力な手がかりを提供するため、今後の物質科学研究を支える手法の1つになるものと期待されます。

研究成果の概要(英文)：In order to experimentally elucidate topological defects in multi-order system, we have upgraded the experimental technique of polarization-dependent angle-resolved photoemission spectroscopy, and developed a method to directly observe the momentum-space distribution of electron orbital components. We have visualized population of two types of crystal-orientation domains which coexist in iron-based superconducting material, and determined the change of local electron orbital upon electron nematic transition by means of direct observation. We have also discovered the dramatic polarization dependence of the bilayer-split bands in high-critical-temperature cuprate superconductors, and revealed the momentum-space distribution of the symmetry of electron orbital.

研究分野：固体光電子分光、物性物理学

キーワード：電子軌道 光電子分光 偏光依存性

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

### 1. 研究開始当初の背景

多秩序系物質で展開される複雑な相転移現象を左右する急所として、位相欠陥が注目されています。一般に、相転移に關与する二準位混成波動関数に位相欠陥が生じると、そこで秩序変数が消失して、エネルギー・ギャップにノードが出現します。銅酸化物系における*d*波超伝導ギャップのノードは、トポロジカルに守られた位相欠陥に該当します。鉄ヒ素系超伝導物質においては、反強磁性構造秩序相におけるスピン密度波ギャップのノードとして、円錐状の分散関係が報告されています。この位相欠陥がトポロジカルに安定か否かを判定し、秩序相転移との関係を明らかにするため、電子の波動関数に含まれる複数の軌道成分を波数空間で分解する実験的な情報が必要でした。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、シンクロトロン放射光や紫外線レーザー光を用いた角度分解光電子分光における偏光依存性実験を高度化することで、波数空間における電子軌道の分布を観測する手法を確立し、軌道成分の観点から位相欠陥の安定性や秩序相転移現象への理解を進展させることです。観測手法の高度化の進展をふまえ、鉄系超伝導物質のフェルミ準位近傍の複数のバンドについて、波数空間における電子軌道の分布を決定し、秩序相転移における軌道成分の役割を調べます。また、銅酸化物超伝導体における*d*波超伝導ギャップのノード点の周辺の波数空間で、電子軌道の対称性の分布を偏光依存性実験により決定し、高温超伝導現象における軌道対称性の役割を調べます。

### 3. 研究の方法

角度分解光電子分光実験の高度化として、励起光の偏光を連続的に変えながら光電子スペクトルを収集できるようにするため、測定装置と分析ソフトウェア、および両者の連携体制を更新します。実験データの次元が上がるので、現実的な時間内に必要なスペクトルをそろえることができるように、データ収集の高速化と効率化を行います。紫外線レーザーについては、集光装置と光軸調整機構を整備し、半波長板や四半波長板を導入します。縦から横の直線偏光へ、右回りから左回りの円偏光へと励起光の偏光制御を二次元化することで、ポアンカレ球面マッピング法を開発します。また、多次元の光電子データを全体的に解析して軌道成分の情報を引き出すためのソフトウェアを開発します。高度化された手法を用いて、鉄系超伝導物質や銅酸化物超伝導物質などの多秩序系物質の軌道成分の分布を観測します。

### 4. 研究成果

計画段階で予想されていたことですが、実験データの次元を上げるために、徹底的な効率化により測定時間を短縮することが要求されました。従来の「足踏み測定モード」では、各測定点で、モーター駆動の完了を確認してから光電子測定を開始していましたが、マッピングのモーター駆動と光電子測定を同時に進行させる「走査測定モード」を開発し、マッピング測定の高速度と安定性を両立できることを実証しました。また、電子の波数空間と励起光の偏光の複合マッピングを実現するには、試料回転に桁違いの精度が要求されます。そこで、試料回転軸をソフトウェア的に補正しながら波数空間マッピングをする仕組みを構築しました。さらに、紫外線レーザーに集光装置と光軸調整機構を整備しました。これらの高度化の成果として、試料表面の光電子走査顕微画像を測定し、測定箇所を数  $\mu\text{m}$  の単位で空間的に特定して超高分解能角度分解光電子マッピングを完遂することが可能になりました。空間選別の予期せぬ効果として、実質的な波数分解能も向上し、銅酸化物超伝導体で波数幅  $\Delta k = 0.0038 \text{ \AA}^{-1}$  の準粒子ピークが観測されました〔雑誌論文②⑥〕。

このような実験技術の高度化と並行して、レーザー光源に半波長板や四半波長板を設置し、各波長板の回転制御機構を光電子測定に組み込んで一体化しました。これにより、縦偏光から横偏光、右回りから左回りの円偏光へと、励起光の偏光を連続的に掃引しながら角度分解光電子分光スペクトルを測定できるようになりました。

最も単純な組成をもつ鉄系超伝導体の鉄セレン FeSe について、走査顕微角度分解光電子分光の典型的な結果を図 1 に示します。偏光依存性実験の結果から、バンド分散の概略は図 1 (c) のようになっており、フェルミ準位近傍に注目すると、結晶配向の領域によって、図 1(a) のように外側のホール・バンドが強く観測されたり、図 1(b) のように内側のホール・バンドが強く観測されたりすることがわかりました。内側に対する外側のバンドのスペクトル強度比を空間マッピングすることで、図 1(d) のように 2 種類の結晶配向領域の分布を可視化することができました。励起光の偏光を掃引しながら、同様の測定を行いました。p 偏光からの角度が  $\eta = 60^\circ$  の直線偏光を用いると、図 1 のように結晶配向による違いを明確に検出できることがわかりました。さらに、試料の測定箇所を数  $\mu\text{m}$  の単位で選別して偏光依存角度分解実験を行うことで、それぞれのホール・バンドが温度とともにエネルギー・シフトする様子をとらえることに成功しました。FeSe の電子液晶転移における軌道成分の寄与の大きさを示しています [雑誌論文①⑦; 学会発表④]。

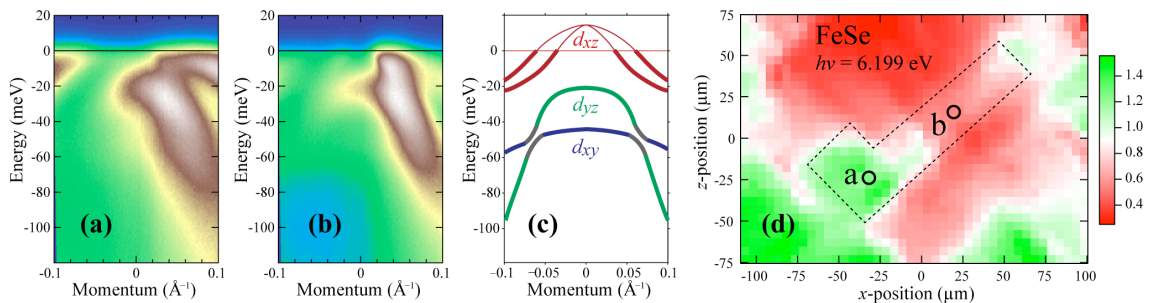


図 1 鉄セレンの走査顕微角度分解光電子分光。p 偏光からの角度が  $\eta = 60^\circ$  の直線偏光で観測された。[雑誌論文①⑦; 学会発表④] (a)および(b) 顕微画像(d)の a 点および b 点で観測された光電子のエネルギー・運動量分布。(c) 鉄セレンのバンド分散の模式図。(d) 内側のホール・バンドに対する外側のホール・バンドのスペクトル強度比の空間マッピング。2 種類の結晶配向領域が可視化された。

二重層銅酸化物高温超伝導体  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  では、ノード点も結合バンドと反結合バンドの 2 つに分裂する。シンクロトロン放射光と紫外線レーザー光を用いた偏光制御角度分解光電子分光実験により、銅酸化物高温超伝導体のノード周辺の電子状態を精密に観測しました [雑誌論文③④⑤⑧⑨; 学会発表①]。当初予期していなかった新しい発見として、二重層の結合バンドと反結合バンドのスペクトル強度比が、励起光の偏光とともに激しく変化することが判明しました [学会発表②③]。図 2 に示すように、ある波数点では、s 偏光だと反結合バンドだけが強く観測されるのに対して、p 偏光だと結合バンドだけが観測されました。直線偏光の方

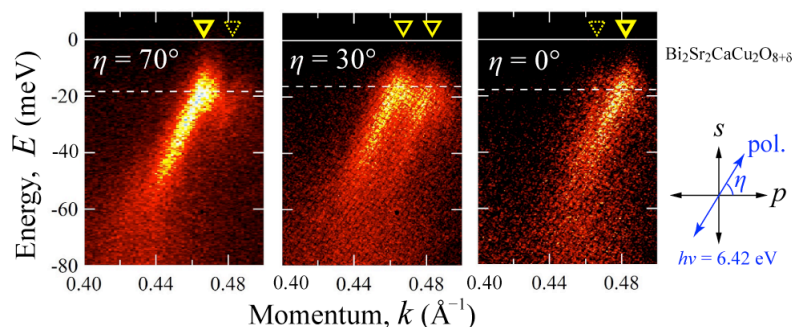


図 2 銅酸化物超伝導体の二重層バンドの偏光依存性。

向を $p$ 偏光からの角度  $\eta$  で表すと、 $\eta$  の変化とともに、結合バンドと反結合バンドの強度比が連続的に変化することがわかりました。

これらの研究の結果として、走査顕微鏡の超高分解能角度分解光電子分光と、励起光を縦偏光から横偏光へ、左円偏光から右円偏光へと連続的に変化させる偏光依存性測定の組み合わせが可能であり、強力な実験手法になることが実証されました。電子軌道成分の波数分布をマッピングする直接的な実験情報は、多秩序系における相転移現象を左右する電子の状態と位相欠陥について、他の手法では得られない強力な実験情報を提供するため、今後の物質科学研究を支える手法の1つになるものと期待されます。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計9件)

- ① E. F. Schwier, A. Ino (4番目), K. Shimada (8番目), 他5名, "Applications for ultimate spatial resolution in LASER based  $\mu$ -ARPES: A FeSe case study", AIP Conference Proceedings (査読有), Vol. 2054, pp. 040017/1-6, 2019年.  
DOI: 10.1063/1.5084618
- ② H. Iwasawa, A. Ino (7番目), K. Shimada (8番目), 他6名, "Accurate and efficient data acquisition methods for high-resolution angle-resolved photoemission microscopy", Scientific Reports (査読有), Vol. 8, pp. 445/1-9, 2018年.  
DOI: 10.1038/s41598-018-34894-7
- ③ 安齋太陽, 井野明洋, 「銅酸化物高温超伝導体における分散キンの新しい景観」, 放射光 (査読有), Vol. 31, pp. 219-225, 2018年.
- ④ H. Anzai, A. Ino (9番目), 他7名, "Rapid enhancement of nodal quasiparticle mass with heavily underdoping in Bi2212", Physica B (査読有), Vol. 536, pp. 667-671, 2018年.  
DOI: 10.1016/j.physb.2017.10.032
- ⑤ H. Anzai, A. Ino (9番目), 他7名, "A New Landscape of Multiple Dispersion Kinks in a High- $T_c$  Cuprate Superconductor", Scientific Reports (査読有), Vol. 7, pp. 4830/1-8, 2017年.  
DOI: 10.1038/s41598-017-04983-0
- ⑥ H. Iwasawa, A. Ino (4番目), K. Shimada (8番目), 他5名, "Development of laser-based scanning  $\mu$ -ARPES system with ultimate energy and momentum resolutions", Ultramicroscopy (査読有), Vol. 182, pp. 85-91, 2017年.  
DOI: 10.1016/j.ultramic.2017.06.016
- ⑦ M. D. Watson, A. Ino (7番目), 他6名, "Shifts and Splittings of the Hole Bands in the Nematic Phase of FeSe", Journal of the Physical Society of Japan (査読有), Vol. 86, pp. 053703/1-4, 2017年.  
DOI: 10.7566/JPSJ.86.053703
- ⑧ H. Anzai, A. Ino (9番目), 他7名, "Doping- and Momentum-Dependent Superconducting Gap of Bilayer Cuprate  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  Revealed Using Low-energy ARPES", Advances in Engineering Research (査読有), Vol. 85, pp. 579-583, 2016年.  
DOI: 10.2991/ame-16.2016.95
- ⑨ H. Anzai, A. Ino (9番目), 他7名, "Nodal Gap Energy in High- $T_c$  Cuprate Superconductors: A new Paradigm", Advances in Engineering Research (査読有), Vol. 85, pp. 495-503, 2016年.  
DOI: 10.2991/ame-16.2016.82

[学会発表] (計4件)

- ① T. Miyashita, K. Shimada (8番目), A. Ino (13番目), 他10名, "Co-substitution effect on electronic structure of high- $T_c$  cuprate superconductor,  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}(\text{Cu}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{O}_8$ ", March 2019 Meeting of American Physical Society (APS2019, Boston, USA), 2019年3月4日.

② 田北仁志, 井野明洋 (10 番目), 他 8 名, 「 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  の二重層分裂バンドの偏光依存角度分解光電子分光」, 日本物理学会 2017 年秋季大会 (岩手大学), 2017 年 9 月 23 日.

③ W. Mansuer, A. Ino (11 番目), 他 9 名, "Angle-resolved photoemission study of  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  using linearly polarized focused laser", International workshop on strong correlations and angle-resolved photoemission spectroscopy (CORPES17, Hiroshima, Japan), 2017 年 7 月 3 日.

④ H. Takita, A. Ino (7 番目), 他 7 名, "LASER ARPES of the Nematic Phase of FeSe", International workshop on strong correlations and angle-resolved photoemission spectroscopy (CORPES17, Hiroshima, Japan), 2017 年 7 月 3 日.

〔図書〕 (計 0 件)

〔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) 研究分担者

研究分担者氏名：島田 賢也

ローマ字氏名：(SHIMADA, Kenya)

所属研究機関名：広島大学

部局名：放射光科学研究センター

職名：教授

研究者番号 (8 桁)：10284225

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。