

S17006, S17020

直線偏光 2 次元光電子分光法によるイリジウム酸化物の原子軌道解析

Atomic-Orbital Analysis of $\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{IrO}_4$ by Linearly-Polarized-Light Two-Dimensional Photoelectron Spectroscopy堀江 理恵^a, 岸本 洋侑^b, 滝沢 優^b, 大門 寛^c, 秋光 純^a
Rie Horie^a, Yosuke Kishimoto^b, Masaru Takizawa^b, Hiroshi Daimon^c, Jun Akimitsu^a^a 岡山大学, ^b 立命館大学, ^c 奈良先端科学技術大学院大学
^a Okayama University, ^b Ritsumeikan University, ^c Nara Institute of Science and Technology

e-mail: horie.rie.hd1@okayama-u.ac.jp

5d 電子系のイリジウム酸化物 Sr_2IrO_4 は、キャリアをドーピングすることで高温超伝導体になる可能性があることが期待されている。著者は、世界的に未だ報告のない最高の電子ドーピング量のイリジウム酸化物単結晶 $\text{Sr}_{1.88}\text{La}_{0.12}\text{IrO}_4$ の育成に成功し、2 次元バンド分散の変化やフェルミ面付近の原子軌道の違いから Sr_2IrO_4 の電子ドーピングによる超伝導体探索の手がかりを得るために、その直線偏光 2 次元光電子分光測定を行った。しかしながら、装置のエネルギー分解能に関わる障害リングの電源の一部が故障しており、修理した後に再測定する必要があることがわかった。

It is expected that the 5d-electron system iridium oxide Sr_2IrO_4 may become a high temperature superconductor by doping carriers. We succeeded in synthesizing the highest electron-doped iridium oxide single crystal $\text{Sr}_{1.88}\text{La}_{0.12}\text{IrO}_4$ which has not been reported worldwide. Linearly polarized two-dimensional photoelectron spectroscopy was carried out for the sample in order to obtain clues to search for superconductors by doping electrons in Sr_2IrO_4 from the difference of the two-dimensional band dispersion and the difference of the atomic orbit near the Fermi surface. However, it was found that a part of the obstacle rings related to the energy resolution capability of the equipment had wrong potential due to the failure of the power supply. It is needed to repair it and we have to do our measurement for atomic-orbital analysis again.

Keywords: iridate, Linearly-Polarized-Light Two-Dimensional Photoelectron Spectroscopy, Atomic-Orbital Analysis, Possible High-Temperature Superconducting Material

背景と研究目的

5d 電子系のイリジウム酸化物 Sr_2IrO_4 は、層状ペロブスカイト型 (K_2NiF_4 型) 構造を持つが、これは銅酸化物高温超伝導体の母物質の一つである La_2CuO_4 と同じ結晶構造であり、電子構造や磁気構造など、複数の類似点を持つことから、 Sr_2IrO_4 にキャリアをドーピングすることで高温超伝導体になる可能性があることが期待されている[1,2]。著者は、世界的に未だ報告のない最高の電子ドーピング量のイリジウム酸化物単結晶 $\text{Sr}_{1.88}\text{La}_{0.12}\text{IrO}_4$ の育成に成功した (図 1)。そこで、本研究では、価電子帯バンドからの光電子の角度分布を 2 次元的に一度に測定できる世界唯一の 2 次元表示型光電子分光器と直線偏光放射光を用いて、今まで明らかになっていなかった $\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{IrO}_4$ 単結晶の 2 次元バンド分散とフェルミ準位付近のバンドを構成する原子軌道の解析を行うことを目的とした。



図 1. 育成した単結晶

実験

2次元光電子分光測定は、立命館大学SRセンター BL-7 [3] に設置されている所属研究室独自のDIANAを用いて行った。真空チャンバー中で劈開を行うことで試料の清浄表面を出した。表面原子構造の確認を低速電子回折(LEED)によって行ったところ、清浄面の1×1構造のパターンを示していたため、 $\text{Sr}_{1.88}\text{La}_{0.12}\text{IrO}_4$ (001)の清浄面が出たと判断した。しかし、そのパターンは1分足らずで観測できなくなった。その後、2D-PESの測定を室温にて超高真空 $\sim 5 \times 10^{-9}$ Pa下で行った。励起光は水平面内の直線偏光 ($e_x = 1, e_y = 0, e_z = 0$) であり、エネルギーは40 eVを用いた。また、角度分解能は約 1° である。

結果、および、考察：

7月のビームタイム (1日) では、図2(下)のスペクトルが得られた。先行研究の図2(上)[4]に見えている3.5 eVと6 eVあたりにあるピークが、7月に測定した図3(下)の(A)と(B)に見えるかすかなピークに対応していると思われる。このときの測定結果 (図2(下)) で一番目立つピーク(C)は先行研究によると価電子帯の底のsバンドに帰属される。このように、大きな特徴は先行研究と定性的に一致している。しかしながら、フェルミ準位 E_F と (A) の間に超伝導にとって重要なバンドがあって先行研究では詳しく議論されているが、7月の測定ではS/Nが悪く、きちんと測れていない。また、図3は、先行研究[5]のフェルミ準位での2次元パターン(a)とBL-7での2次元光電子分光のパターン(b)である。白線はそれぞれ、第一BZを示している。図3(a)の先行研究[5]と比較すると、図3(b)では、BZの大きさと測定したパターンの光電子放出強度の強いところが、点線部分のように、だいたい合っているが、うっすらとしか見えていない。このように、 E_F 付近は特にS/Nが悪く観測できていなかったため、11月に再測定を行った。 E_F からIrのバンドが存在している結合エネルギー1.5 eVまでは0.1 eVごとに1パターン測定し、1パターンにつき10分の溜め込みを行い(約150分)、1.6~10 eVまでは、0.2 eVごと測定し、1パターンにつき6分のためこみを行った(約260分)が、図4のようにS/N比が悪い結果となった。7月の測定時にも見えていたが、バックグラウンドに横線が二本入っている。エネルギー分解能に関わる障害リングの電圧を調べたところ、かかるべき電圧がかかっていない箇所が多いことがわかった。また、LEEDパターンを観測できたものの、一分足らずでパターンが見えなくなるという結果となったため、La高濃

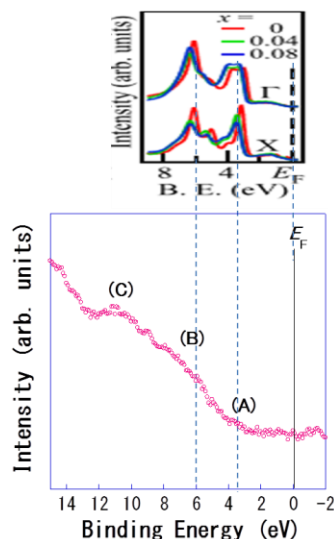


図2. (上) $\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{IrO}_4$ ($x = 0, 0.04, 0.08$) におけるX点と Γ 点での光電子スペクトル[4].

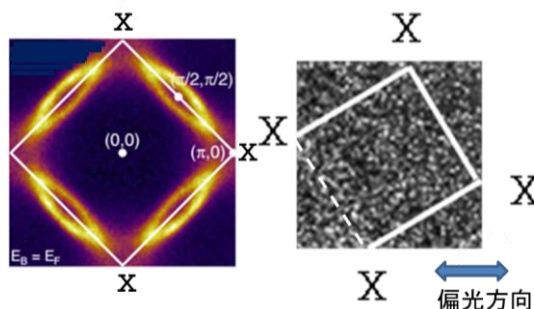


図3. E_F における $\text{Sr}_{1.85}\text{La}_{0.15}\text{IrO}_4$ (仕込)の (a)先行研究[5]と(b)得られた2次元光電子分光パターン.

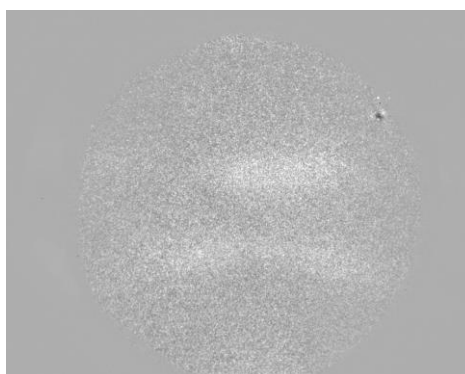


図4. 11月測定時のデータ. E_F 付近における $\text{Sr}_{1.85}\text{La}_{0.15}\text{IrO}_4$ (仕込)の2次元光電子分光パターン.

度試料では、劈開面の構造が崩れやすいことが示唆される。実験のやり易さも考慮し、今後は La ドープなしの試料、 $\text{La}_{0.1}$ 程度の低ドープ試料の測定から行うことも必要と考えている。

今後は、障害リング電源の修理を行い、低ドープの La 試料から測定していき、一番きれいにパターンが取れる条件を見出すことで、高濃度 La ドープ試料の 2 次元光電子分光測定へとつなげて行き、銅酸化物と Ir 酸化物におけるバンド分散の違いを原子軌道の観点から詳細に調べることを計画している。

参考文献

- [1] B. J. Kim, H. Ohsumi, T. Komesu, S. Sakai, T. Morita, H. Takagi, and T. Arima, *Science* **323** (2009)1329.
- [2] H. Watanabe, T. Shirakawa, and S. Yunoki, *Phys. Rev. Lett.* **110** (2013) 027002.
- [3] Y. Hamada, F. Matsui, Y. Nozawa, K. Nakanishi, M. Nanpei, K. Ogawa, S. Shigenai, N. Takahashi, H. Daimon and H. Namba, *AIP Conf. Proc.* **879**, 547 (2007).
- [4] K. Terashima, M. Sunagawa, H. Fujiwara, T. Fukura, M. Fujii, K. Okada, K. Horigane, K. Kobayashi, R. Horie, J. Akimitsu, E. Golias, D. Marchenko, A. Varykhalov, N. L. Saini, T. Wakita, Y. Muraoka, and T. Yokoya, *Phys. Rev. B* **96** (2017) 041106(R).
- [5] A. de la Torre, S. McKeown Walker, F. Y. Bruno, S. Ricc , Z. Wang, I. Gutierrez Lezama, G. Scheerer, G. Giriat, D. Jaccard, C. Berthod, T. K. Kim, M. Hoesch, E. C. Hunter, R. S. Perry, A. Tamai, and F. Baumberger, *Phys. Rev. Lett.* **115** (2015) 176402.

研究成果公開方法／産業への応用・展開について

- ・本研究成果は、11th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices '17 (ALC'17)にて成果公開を行った。また、立命館大学 SR センター報告会にて報告予定である。