

令和 4 年 6 月 15 日現在

機関番号：82401

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2019～2021

課題番号：19K22120

研究課題名（和文）光渦を用いた固体の新規励起現象の探索

研究課題名（英文）Investigation of collective excitations in solids by vortex beam

研究代表者

下志万 貴博（Shimajima, Takahiro）

国立研究開発法人理化学研究所・創発物性科学研究センター・上級研究員

研究者番号：70581578

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 5,000,000円

研究成果の概要（和文）：研究期間全体を通して、ピコ秒およびナノメートルの精度を有する超高速時間分解電子顕微鏡法を確立し、光渦を生成する光学系と組み合わせた。光渦による局所加熱および光の軌道角運動量を用いた新規励起現象の探索に関する実験を現在も継続している。一方で、薄片試料上のナノ構造体へのレーザー光の均一照射により、音響波の伝搬やナノ磁気構造体の超高速運動を可視化することに成功した。さらに、数値シミュレーションにより薄片及びバルク結晶中を伝搬する音響波の発展過程を明らかにした。これらの成果から、局所加熱が引き起こす薄片中の超高速現象の理解が大きく進展した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

光による固体物性の制御は、磁気メモリ、スイッチング素子、オプトメカニクス等への応用から盛んに研究されている。特にナノスケール現象をナノ秒以上の精度で可視化するイメージング手法による研究が有効である。本研究では、国内でも例の少ない超高速時間分解電子顕微鏡法を確立し、音響波の伝搬やナノ磁気構造体の運動を実時間で可視化することに成功した。今後、数値シミュレーションと組み合わせることにより局所加熱を利用した様々な電子デバイス開発に向けた研究展開が期待される。

研究成果の概要（英文）：We constructed the ultrafast transmission electron microscopy combined with the optical setup for the vortex beam. We continued the measurements of the local heating and new phenomena induced by the vortex beam. On the other hand, we succeeded in visualizing the acoustic wave propagation and skyrmion dynamics by irradiating the nanostructured samples with the laser with large spot size. We also developed the program for the numerical simulation of the acoustic wave in the thin film and bulk crystal. These results push forward the understanding of the ultrafast phenomena induced by the local heating.

研究分野：光物性

キーワード：超高速時間分解電子顕微鏡 ポンププローブ法 光渦 超短パルスレーザー

### 1. 研究開始当初の背景

近年、光の軌道角運動量をもつ新たなレーザー光である「光渦」が実現されている。これまでに光渦の照射による螺旋構造物の形成や微粒子の回転等の物質制御、回折限界を超えた局所集光が知られている。このような新規現象を探索し理解するためには、光渦と超高速顕微手法を組み合わせた研究が有効である。

### 2. 研究の目的

本研究では、光渦の特性が反映された固体の局所励起状態を探索し、高精度に可視化することを目的とする。具体的には、光渦による磁気スキルミオンや音響フォノンの発生を試み、その形成および伝搬過程を超高速時間分解電子顕微鏡により明らかにする。

### 3. 研究の方法

本研究目的を達成するためには、固体の微小領域に励起される空間的非一様なダイナミクスをイメージング検出する必要がある。本研究では、ナノメートルの空間分解能とピコ秒の時間分解能を両立する実験手法である超高速時間分解電子顕微鏡法を用いる。理化学研究所に現有する本装置は、透過電子顕微鏡と超短パルスレーザーを組み合わせた構造を有する。光学系においてフェムト秒レーザー（波長 1030nm）を2つの経路に分岐し、一方を非線形光学結晶に通して4倍波（波長 258nm）へと変換する。生成した4倍波を透過電子顕微鏡の上部に位置するフォトカソード電子銃に照射することにより光電効果を生じさせ、フェムト秒の時間幅を有するパルス電子を得る。他方の経路のレーザー光（波長 1030nm）は直接試料に照射され、励起緩和過程を引き起こす。本装置ではパルスレーザーとパルス電子との遅延時間を制御し、ナノ空間の超高速現象をポンププローブ法により検出することが可能である。本装置の光学系に新たに位相板を導入し、生成された光渦を励起光として用いる。特に軌道角運動量を励起パラメータとするために、チャージ数の異なる複数の位相板を切り替え可能な構造とする。またビームの回折効果を排除し質の高い光渦を得るためにピンホールを用いたモードクリーニングを行う。

光渦は強度分布が光軸上でゼロになる特異点を有する。このリング状の強度分布を用いて渦状の磁気構造（スキルミオン）を熱的に励起できる可能性が理論的に指摘されている。本課題では、直径 2 μm までスポット径を絞った光渦をカイラル磁性体  $\text{Co}_8\text{Zn}_8\text{Mn}_4$  に照射し、その中心軸付近に現れる微小なスキルミオンの生成過程をローレンツ電子顕微鏡像により可視化する。特に、試料に定常電流を通電することで生成されたスキルミオンが視野から除外され、可逆過程としてポンププローブ検出が可能となる。また、超高速電子顕微鏡の明視野像観察により、超短パルスレーザー照射により生じた音響フォノン（衝撃波）のイメージング検出が可能である。音響フォノン発生時の主要な機構として光吸収に伴う急激な格子膨張が挙げられる。光渦を用いるとチャージ数に応じた異なる温度分布が固体に形成され、音響フォノンの形成に自由度が生ずる。音響フォノンの波長制御あるいはヘリシティを有する新規な渦状の音響フォノンが検出される可能性が考えられる。

### 4. 研究成果

初年度は、予備実験として渦構造をもたない超短パルスレーザー照射により生じた音響フォノン（衝撃波）のイメージング検出を試みた。初めに Si 単結晶を用いて、光吸収に伴う急激な格子膨張による音響フォノン発生を観測した。明視野像観察において薄片試料を伝わる衝撃波の伝搬をピコ秒の時間分解能で検出した。特に、薄片試料における不連続な境界が振動源となることが明らかとなった。次に、 $1T''\text{-VTe}_2$  において光誘起構造相転移を利用した新規な音響フォノンの観測に成功した。この音響フォノンは、構造相転移（図 1a）により生ずる特定の結晶軸方向の原子変位に起因していると考えられる。さらに結晶構造の異方性を反映し、結晶軸ごとに異なる音速により伝搬する様子

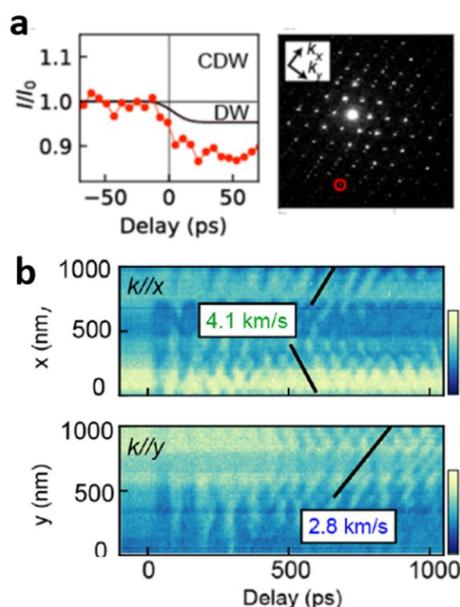


図 1 a.  $1T''\text{-VTe}_2$  の電子回折パターンとその強度の時間依存性。超格子ピーク強度の減少は、光照射による電荷密度波の融解を示唆している。b. 透過電子顕微鏡明視野像における結晶軸に沿ったラインプロファイルの時間依存性。黒線の傾きが音速を表す。

をとらえた(図 1b)。これに加えて、本装置に新たに位相板を導入し、生成された光渦を励起光として用いる光学系の構築に着手した。

次年度は、固体中を伝搬する光誘起コヒーレント音響フォノンに関する数値シミュレーションを行った。薄片およびバルク試料中における伝搬過程の相違を定量的に明らかにし、Structural dynamics 誌に発表した。また、予備実験としての位置づけである VTe<sub>2</sub> における光励起コヒーレント音響フォノンの生成に関する成果を Nano Letters 誌に発表した。昨年度に引き続き、ピコ秒明視野像観察法により Si 薄膜の光励起音響フォノンダイナミクスの観測を行った。収束イオンビーム法を用いて薄片試料

上に様々な形状および配列を有する空孔形成および金属蒸着を行い、音響フォノンの反射、収束および整流効果の検証を行った。その結果、金属の構造物からコヒーレント音響フォノンが生じ、放物線状の空孔により反射する様子を観測した。音響フォノンの超高速制御を示唆する成果として、Faraday Discussions 誌に発表した。また、磁気スキルミオンの光駆動に関する実験により、格子欠陥周りのスキルミオンの柔軟な運動を観測した(図 2)。本成果は Science Advances 誌に掲載された。ガウシアンビームにより試料をほぼ均一に加熱した本結果に対して、回折限界よりも小さなスポット径を有する光渦により局所的な温度勾配を引き起こすことが可能になれば、より多彩なスキルミオンダイナミクスの励起が期待される。

最終年度は引き続き光渦光学系の構築、調整、実験を行った。回折限界を超えた小さなスポット径を有する光渦により局所的な温度勾配を引き起こすことによるスキルミオンダイナミクスの励起や固体中を伝搬する光誘起コヒーレント音響フォノンに関する実験を継続している。一方で、ガウシアンビームによるほぼ均一な照射下において、収束イオンビーム法により形成した局所構造物をコヒーレント音響フォノンの極小な波源として利用する研究を行った。イットリウム鉄ガーネット結晶を収束イオンビーム法により厚さ 100 nm 程度の薄片に加工し、試料端にタングステン層を蒸着した。ここに試料全面を覆う近赤外光を照射すると、幅 500 nm 程度の薄いタングステン層のみが光を吸収することで急速な熱膨張を引き起こす。これを引き金として、薄片試料中を音速で伝搬する音響波を発生することに成功した。生成された音響波が、磁壁が交差する磁気渦に到達すると磁壁が広範囲にわたって振動を開始する現象を観測した。磁気渦が周期的な格子歪みによる変調を受けることでスピンの歳差運動が生じ、その影響が高速で磁壁に伝搬した可能性が示唆される。磁壁の振動は音響波と同じ周期を示すため、両者の因果関係が強く示唆される。本成果について論文投稿を準備中である。格子歪みが励起するスピンドイナミクスに関しては多くの先行研究があるが、ピコ秒およびナノメートルの精度によりリアルタイムに可視化した研究例は非常に少ない。本研究により、光誘起音響波を利用したスピンドイナミクスの超高速制御において定量的な知見が得られた。

研究期間全体を通して、ピコ秒およびナノメートルの精度を有する超高速電子顕微鏡法の確立により、局所加熱が引き起こす超高速現象の理解が大きく進展した。光渦による局所加熱および光の軌道角運動量を用いた新規励起現象の探索に関しては現在も実験を継続している。本研究により、観測データと数値シミュレーションとの定量的な比較から薄片中の音響波の伝搬やナノ磁気構造体の超高速運動についての研究が可能となった。

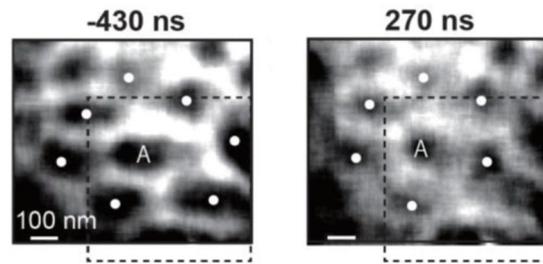


図 2. 光照射前(左)と照射後 270 ns(右)における、Co<sub>9</sub>Zn<sub>9</sub>Mn<sub>2</sub> のナノ秒ローレンツ電子顕微鏡像。スキルミオン A の周辺の歪んだスキルミオンクラスターが光照射後にほぼ 6 回対称に変形する様子。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

|   |                          |
|---|--------------------------|
| 1. 著者名<br>T. Shimojima, A. Nakamura, X. Z. Yu, K. Karube, Y. Taguchi, Y. Tokura, K. Ishizaka                | 4. 巻<br>-                |
| 2. 論文標題<br>Nano-to-micro spatiotemporal imaging of magnetic skyrmion's life cycle                           | 5. 発行年<br>2021年          |
| 3. 雑誌名<br>Science Advances  | 6. 最初と最後の頁<br>-          |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子）<br>10.1126/sciadv.abg1322   | 査読の有無<br>有               |
| オープンアクセス<br>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<br>-                |
| 1. 著者名<br>A. Nakamura, T. Shimojima, and K. Ishizaka  | 4. 巻<br>8                |
| 2. 論文標題<br>Finite-element simulation of photoinduced strain dynamics in silicon thin plates                 | 5. 発行年<br>2021年          |
| 3. 雑誌名<br>Structural Dynamics   | 6. 最初と最後の頁<br>024103_1-8 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子）<br>10.1063/4.0000059  | 査読の有無<br>有               |
| オープンアクセス<br>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<br>-                |
| 1. 著者名<br>A. Nakamura, T. Shimojima, Y. Chiashi, M. Kamitani, H. Sakai, S. Ishiwata, H. Li, and K. Ishizaka | 4. 巻<br>20               |
| 2. 論文標題<br>Nanoscale Imaging of Unusual Photoacoustic Waves in Thin Flake VTe <sub>2</sub>                  | 5. 発行年<br>2020年          |
| 3. 雑誌名<br>Nano Letters  | 6. 最初と最後の頁<br>4932-4938  |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子）<br>10.1021/acs.nanolett.0c01006   | 査読の有無<br>有               |
| オープンアクセス<br>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<br>-                |
| 1. 著者名<br>中村飛鳥、下志万貴博、石坂香子   | 4. 巻<br>56               |
| 2. 論文標題<br>電荷密度波物質VTe <sub>2</sub> における光音響フォノンのナノスケールイメージング   | 5. 発行年<br>2021年          |
| 3. 雑誌名<br>固体物理  | 6. 最初と最後の頁<br>25-32      |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子）<br>なし   | 査読の有無<br>有               |
| オープンアクセス<br>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<br>-                |

|  |                 |
|--|-----------------|
| 1. 著者名<br>Nakamura A., Shimojima T., Ishizaka K.   | 4. 巻<br>-       |
| 2. 論文標題<br>Visualizing optically-induced strains by five-dimensional ultrafast electron microscopy | 5. 発行年<br>2022年 |
| 3. 雑誌名<br>Faraday Discussions  | 6. 最初と最後の頁<br>- |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1039/d2fd00062h   | 査読の有無<br>有      |
| オープンアクセス<br>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<br>-       |

〔学会発表〕 計6件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 0件)

|                                     |
|-------------------------------------|
| 1. 発表者名<br>下志万 貴博 , 中村 飛鳥 , 石坂 香子   |
| 2. 発表標題<br>超高速電子顕微鏡における 5次元STEM法の開発 |
| 3. 学会等名<br>日本顕微鏡学会第76回学術講演会         |
| 4. 発表年<br>2020年                     |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>中村 飛鳥 , 下志万 貴博 , 石坂 香子              |
| 2. 発表標題<br>超高速電子顕微鏡による微細加工Si薄片中のコヒーレント音響フォノン観測 |
| 3. 学会等名<br>日本顕微鏡学会第76回学術講演会                    |
| 4. 発表年<br>2020年                                |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>下志万貴博  |
| 2. 発表標題<br>時間分解電子顕微鏡による機能性ナノ材料のダイナミクス観測                           |
| 3. 学会等名<br>日本顕微鏡学会超高分解能顕微鏡法分科会, 2020年度研究会「超高時間分解能顕微鏡の進展と展望」(招待講演) |
| 4. 発表年<br>2021年   |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>下志万貴博   |
| 2. 発表標題<br>超高速時間分解電子顕微鏡の現状と展望  |
| 3. 学会等名<br>日本電子株式会社ウェビナー「新領域を切り拓く透過電子顕微鏡とレーザー技術の融合 ~ 超時間分解TEMおよびレーザー励起その場観察の紹介~」(招待講演) |
| 4. 発表年<br>2021年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>中村 飛鳥, 下志万 貴博, 千足 勇介, 上谷 学, 酒井 英明, 石渡 晋太郎, 李 瀚, 押山 淳, 石坂 香子 |
| 2. 発表標題<br>超高速電子顕微鏡による1T'-VTe2のコヒーレント音響フォノンの観測                         |
| 3. 学会等名<br>日本顕微鏡学会 第75回学術講演会   |
| 4. 発表年<br>2019年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>中村飛鳥, 下志万貴博, 石坂香子             |
| 2. 発表標題<br>微細加工シリコン単結晶薄膜におけるコヒーレント音響フォノン |
| 3. 学会等名<br>日本物理学会 2019年秋季大会              |
| 4. 発表年<br>2019年                          |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

| 氏名<br>(ローマ字氏名)<br>(研究者番号) | 所属研究機関・部局・職<br>(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 |
|---------|---------|
|---------|---------|