

令和 5 年 6 月 7 日現在

機関番号：12601  
研究種目：国際共同研究加速基金（国際共同研究強化(A））  
研究期間：2020～2022  
課題番号：19KK0350  
研究課題名（和文）時間分解光電子分光法のスリットレス化

研究課題名（英文）Slitless time-resolved ARPES

研究代表者

石田 行章（Ishida, Yukiaki）

東京大学・大学院理学系研究科（理学部）・特任講師

研究者番号：30442924

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 10,300,000円

渡航期間： 9ヶ月

研究成果の概要（和文）：ソウル大学にあるISSP-CCES共同ラボにて以下を達成した：(1) 2台の時間分解能ARPESシステムを共同ラボへ移設した。(2) 通常の実験室環境でも安定に動作するフェムト秒域レーザー高調波光源を開発した。この光源をスリットレス光電子分析器に組みこみ、従来を1-2桁上回る精度で仕事関数を測定する新手法を実証した。(3) スリットレス分析器と円偏光レーザー高調波を用いて光電子立体角分布における円二色性を調べ、そのパターンの分類法を網羅した。(4) 小型第2高調波検出器を開発し、遷移金属カルコゲナイドの一次相転移を観察した。(5) 手のひらサイズの1 MHzフェムト秒域パルスレーザーを開発した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本課題で得られた成果は、超高速分光学、レーザー技術、材料科学の領域に渡って意義をもち、ISSP-CCESの共同ラボにおけるさらなる国際共同研究を促進する。本研究期間中に開発した小型で汎用性のあるフェムト秒域パルスレーザー光源や装置は、光電子分光に限らず様々な科学・技術分野で進歩とイノベーションを推進すると期待される。

研究成果の概要（英文）：In the ISSP-CCES Joint Research lab located at Seoul National University, we achieved the followings: (1) Two time-resolved ARPES systems developed at ISSP were transferred to the Joint-Research lab; (2) We succeeded in developing a compact femto-fiber laser system that operates in an ordinary laboratory environment; thereby we docket the laser system to a slitless photoelectron analyze and demonstrated a new method by which work function can be measured with a precision better than 1-2 orders of magnitude than conventional methods; (3) By utilizing a slitless analyzer and circularly-polarized laser harmonics, we investigated the circular dichroism in the photoelectron solid angular distribution, and formulated the pattern classification. (4) We developed a compact second harmonic generation detector and observed some novel first-order structural transition occurring in a transition-metal chalcogenide; (4) We developed a compact 1 MHz femto-fiber laser system that operates on a hand.

研究分野：固体および固体表面の電子物性

キーワード：角度分解光電子分光 仕事関数 ファイバーレーザー 表面第2高調波

1. 研究開始当初の背景

Center for Correlated Electron Systems (CCES) は韓国の Institute of Basic Sciences (IBS) にサポートを受ける研究センターであり、ソウル国際大学に拠点を持つ。2019年4月22日に東京大学物性研 (ISSP) と IBS-CCES の両機関の間で Memorandum of Understanding (国際協定) が締結され、IBS-CCES の中に ISSP-CCES Joint Research Laboratory (共同ラボ) が開設された。この共同ラボの主たる目的は、レーザーを用いた先端電子物性研究法の開発と利用研究を推進することと設定された。

IBS-CCES の電子物性研究グループは角度分解光電子分光法 (Angle-resolved Photoemission spectroscopy, ARPES) を軸とした電子物性研究を展開しており、特に 2015 年頃に商用化された 2 台の「スリットレス電子分析器」に基づいた装置開発を行っていた。従来の分析器によって一度に取り込める光電子はせいぜい 1 次元のスリットに入射するものであったが、このスリットないしその概念がなくなったものがスリットレス分析器である (図 1)。最先端のスリットレス分析器を用いることで、試料と光の位置関係を変えずに 2 次元の立体角に放出される光電子を一度に取り込むことが可能となる。

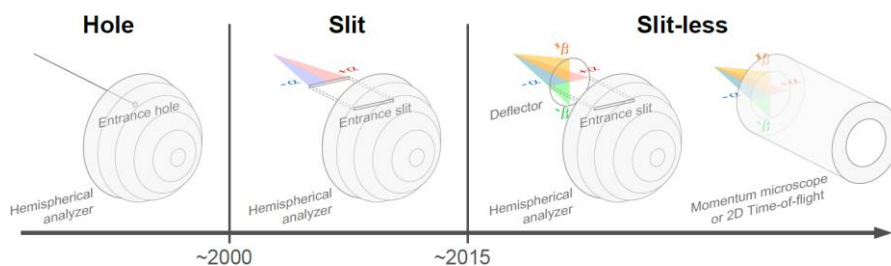


図 1 : 光電子分析器の変遷とスリットレス分析器 (Ishida et al., RSI 2018)

スリットレス光電子分析器の登場により、ARPES は複数の次元 (ナノスケールの空間分解能、スピン、時間、偏向) に向けてさらに発展することが期待される。特に単色性、偏向特性、超短パルス特性に優れた性質を発揮するレーザー高調波光源を組み合わせると、偏向特性を余すところなく活用したり広い運動量空間にわたって超高速キャリアダイナミクスを追跡したりすることが可能となり、新しい研究展開が拓ける。

2. 研究の目的

研究代表者はこれまで時間分解 ARPES (Time-resolved ARPES, TARPES) 装置の開発と高度化およびこれを用いた研究を中心的に行ってきた。3 台の TARPES 装置の開発に携わり、そのうち 2 台はそれぞれ世界最高繰返し周波数 95 MHz (YI et al., RSI2016) および世界最高エネルギー分解能 10.5 meV (YI et al., RSI2014) を達成した。可能となった精密 TARPES 測定を通じて非平衡電子状態研究の分野開拓を進めてきた。

本研究課題の基課題である「超高速非平衡現象の電子論」の目的は、開発してきた 2 台の TARPES 装置を用いた精密測定を通して、固体物質やその表層に生じる極端な非平衡現象を電子論的に解明することであった。本課題では、これら 2 台の TARPES 装置をソウル大学に移設し、またレーザー高調波光源を駆動して最先端分析器を駆動することで、レーザー光電子分析技術の開拓と利用研究を展開することを目的とした。

3. 研究の方法

レーザー高調波光源は概して大型であり、恒温湿のクリーンルームの中に設置された除振台

の上で安定して動作する。レーザーARPES装置を東大物性研からソウル大の共同ラボに移設するのに先だって、ソウル大19号棟にある75 m<sup>2</sup>の部屋をクリーンルームに改築した(図2)。2020年6月に大型空調を導入して恒温無塵の環境を整え、また2021年12月に寒剤の液体ヘリウムを使用するための液化装置を導入して低温測定環境を整えた。コロナ禍が始まった直後であったが、2020年4月20日に総重量3.1トンの時間分解光電子分光装置(Ishida et al., RSI 2014)の移送が無事完了した(図2)。

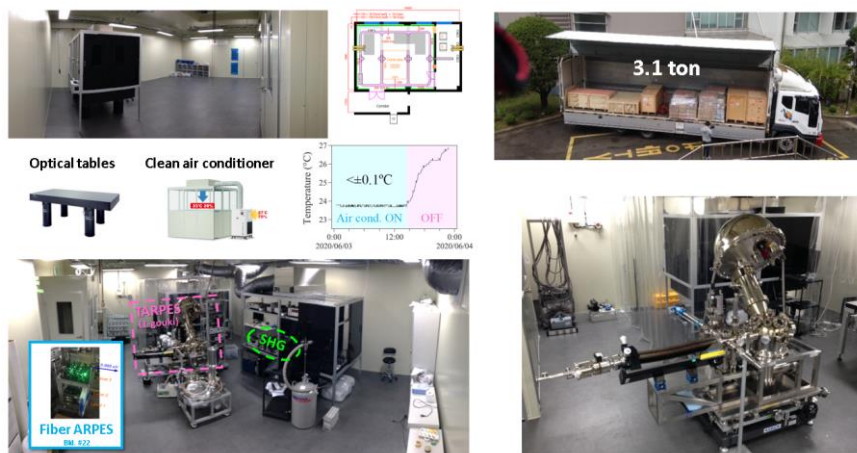


図2：ソウル大に開設されたISSP-CCES共同ラボとTARPES装置の移設。

一方、小型化を図るのに有利な光ファイバーで構成されるフェムト秒域パルスレーザーに着目し、これを大型の空調や除震台なしでレーザー高調波を運用することにも挑戦した。この高調波光源をソウル大の通常実験室環境にあるスリットレス光電子分析器に併設することでスリットレスのレーザー光電子分光を実現し、新しい分析技術の開拓を目指した。

#### 4. 研究成果

##### 4-1：汎用95 MHz小型フェムト秒域高調波光源の開発 (YI et al., Commun. Phys. 2020)

通信でひろく使われる光ファイバーは糸のように巻き取ることができるので、光ファイバーを用いて構成されるレーザー共振器は小型化を図るのに有利である。これまで光ファイバーを用いて構成した小型のフェムト秒域レーザー高調波光源(YI et al., RSI 2016)は恒温のクリーンルーム内の大型除振台の上で安定して動作するものであった。この光源をソウル大に移設し、光源の更なる小型化を図るとともに、無塵室や大型除振台がなくても安定に動作させることを目指した。小型の筐体にフェムト秒レーザー共振器、アンプおよび高調波変換の光学系を組み、アクリル板で適切に断熱を施し、さらに最も光が集光する箇所をサララップ様のラボフィルムで被うことでほこり対策をしたところ、通常実験室環境において少なくとも3カ月にわたって安定にレーザー高調波を発生させた。

##### 小型高調波光源

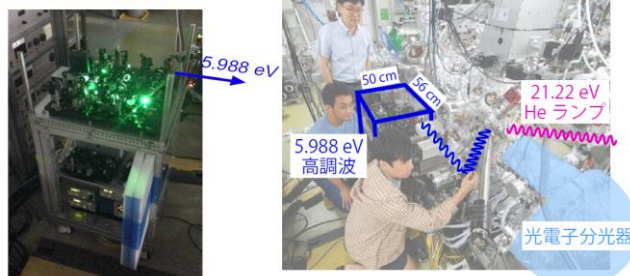


図3：通常実験室環境で動作する小型ファイバーレーザー高調波光源(左)。ヘリウムランプとレーザー高調波の両光源で駆動するスリットレス光電子分析器。

開発・改良を施した高調波光源

は床面積50 x 56 cm<sup>2</sup>と十分小型であり、ソウル大の通常実験室環境にあるスリットレス光電子

分析器に併設することができた (図 3)。これにより、韓国で初となるレーザーARPES に成功した。この装置を用いて、従来を 1-2 桁上回る世界最高精度で仕事関数を測定する新手法を実証した。

#### 4-2 : 光電子立体角分布の円二色性パターンの分類 (YI et al., Submitted)

光と試料の位置関係を固定した状態で光電子の立体角分布を測定できるというスリットレス光電子分析器の特長をいかして、光電子分布の円二色性のパターンを分類する研究を行った。

試料には高配向グラファイト (Highly Oriented Pyro-Graphite, HOPG) の上に真空蒸着したビスマス (Bi) を用いた。Bi は HOPG 上で 111 面が配向した微結晶として成長し、試料をマクロに見ると、あらゆる面内回転および面直を含む面についての鏡映操作について対称である  $C_{\infty v}$  点群の対称性をもつ (図 4)。この非常に高対称な試料に左右円偏向のレーザー高調波を有限の入射角で照射して光電子分布の円二色性を測定した。試料が非常に高対称であるにも関わらず円二色性は完全に消失せず、入射角を含む面内方向についてゼロとなるパターンを示した。

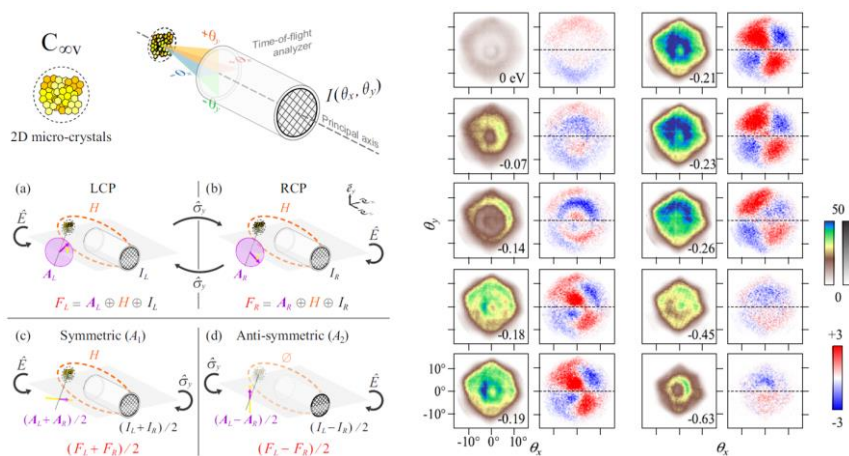


図 4 : スリットレス分析器でとらえた光電子立体角分布の円二色性。試料は  $C_{\infty v}$  の対称性をもつ高配向 Bi を用い、ここに左右円偏向を有限の入射角で照射して出てくる光電子の立体角分布をスリットレス分析器でとらえた。円二色性分布は、入射面でゼロとなるノードを有する。

得られた光電子立体角分布の円二色性のパターンが、光、試料、分析器を含む実験系全体の点群操作の既約表現 ( $C_{\infty v}$  群の  $A_2$  表現) の基底と同一視できることを示した。さらに一般の場合を考察し、波動関数の表面局在度に応じてパターンが  $C_{2v}$  の既約表現の基底で表される場合があること、また直入射の場合や試料が結晶の場合などの場合分けを行った。なお、この場合分けは光と電子の相互作用が鏡映に対して対称であることのみ依存しており、相互作用の具体的な形 (例えばダイポール近似の相互作用) には寄らない一般的なものである。また、対掌性の研究からの派生で、野球ボールの縫い目に向きがあることによる対称性の低下および縫い目の向きを指で感知した時の心理的效果についての新知見を報告した (YI, i-Perception 2023)。

#### 4-3 : ファイバーレーザーで駆動する小型第 2 高調波検出装置 (Kim, YI et al., RSI 2021)

固体結晶の表面は空間反転分布が破れている。従って、2 次の非線形光学効果が必ず許容となる。この 2 次の非線形感受率  $\chi^{(2)}$  のテンソル要素を全て求めるためには、表面の法線に関してフェムト秒パルスレーザーの入射面を  $360^\circ$  回転させて第 2 高調波発生 (Second Harmonic Generation, SHG) の入射方位角依存を調べる必要がある (図 5)。

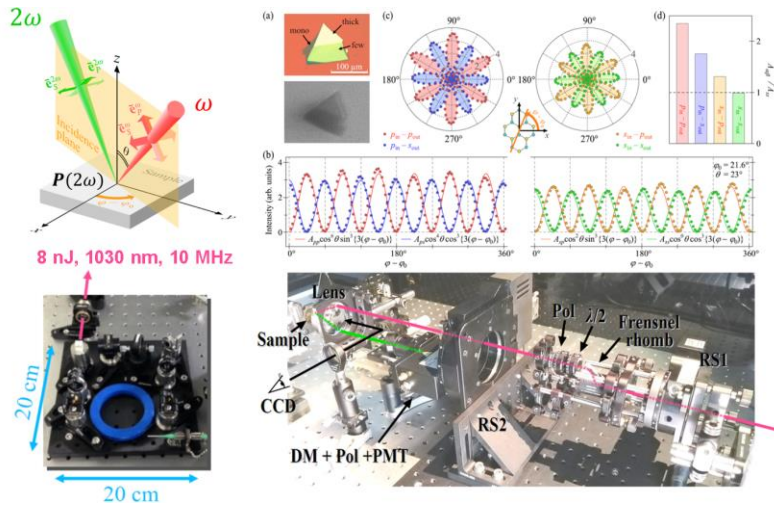


図5：入射面回転型の表面第2高調波検出装置（Kim, YI et al., RSI 2021）。小型のフェムト秒域ファイバーレーザーを光源とする。WSe単原子層からのSHGのパターンを明瞭に観測した。

光ファイバーから成る小型のフェムト秒域パルスレーザーを作製し、これを光源に用いた小型のSHG検出装置を開発した（Kim, YI et al., RSI 2021）。従来2つ以上の回転ステージを使って回していた入射面を一つの回転ステージだけで実現することが可能となり、装置全体の小型化に成功した。作製した入射面回転型の小型SHG検出装置を用いて、数十ミクロン四方のWSe2単原子膜からのSHGパターンを検出することに成功した（図5）。この装置を用いて、遷移金属カルコゲナイドの表層の一次構造相転移に伴うバルクハウゼン様の効果を観測した。

#### 4-4：小型1 MHz フェムト秒パルスレーザーの開発（YI et al., in preparation）

飛行時間型のスリットレス光電子分析器（Angle-resolved time-of-flight spectrometer, ArTOF）の最大データ取得レートは約毎秒100万回（1 MHz）である。従って、ArTOF型のスリットレス分析器の性能をフルに発揮させるのは1 MHz（1 μ秒間隔）で繰り返しパルスを発射する光源である。本課題の期間中、ArTOFの性能をフルに発揮させることを目指して小型の1 MHz フェムト秒域ファイバーレーザー光源の開発を行った。

レーザー共振器から直接1 MHzのパルスを発射させるためには、共振器の光路長が300 m 必要になる。共振器の光回路の構成を工夫することで、300 mの光路長の光ファイバーを15 cm 四方、高さ4 cmのアルミの箱に納めることができた。重量は1 kg程度であり、手のひらの上で安定にフェムト秒パルスを発射し続けた。本課題の最終年度に東京大学理学系に移り、1 MHzパルスレーザーをオフィス環境で安定に動作させることに成功し、また光ファイバー融着システムを導入してファイバーレーザーを自作する環境を構築した。本研究により、通常環境で高強度フェムト秒パルスレーザーを用いる展望が拓けた。

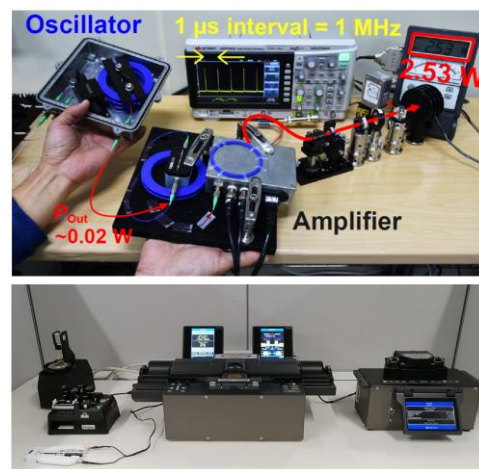


図6：手のひらサイズの1 MHz フェムト秒域パルスレーザー光源と光ファイバー融着システム。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Saegyeol Jung, Yukiaki Ishida, Minsoo Kim, Masamichi Nakajima, Shigeyuki Ishida, Hiroshi Eisaki, Woojae Choi, Yong Seung Kwon, Jonathan Denlinger, Toshio Otsu, Yohei Kobayashi, Soonsang Huh, Changyoung Kim	4. 巻 249
2. 論文標題 Effect of the sample work function on alkali metal dosing induced electronic structure change	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena	6. 最初と最後の頁 147045
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.elspec.2021.147045	査読の有無 有
オープンアクセス 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 該当する
1. 著者名 Ishida Y., Jung J. K., Kim M. S., Kwon J., Kim Y. S., Chung D., Song I., Kim C., Otsu T., Kobayashi Y.	4. 巻 3
2. 論文標題 Work function seen with sub-meV precision through laser photoemission	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Communications Physics	6. 最初と最後の頁 158
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s42005-020-00426-x	査読の有無 有
オープンアクセス 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 該当する
1. 著者名 Kim S. H., Jung S., Seok B., Kim Y. S., Park H., Otsu T., Kobayashi Y., Kim C., Ishida Y.	4. 巻 92
2. 論文標題 A compact and stable incidence-plane-rotating second harmonics detector	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Review of Scientific Instruments	6. 最初と最後の頁 043905 ~ 043905
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0047337	査読の有無 有
オープンアクセス 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 該当する
1. 著者名 Yukiaki Ishida	4. 巻 14
2. 論文標題 A new category of “Aha!” driven by touch: A grip sensation into the directional seam on a baseball	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 i-Perception	6. 最初と最後の頁 1-10
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1177/20416695231175598	査読の有無 有
オープンアクセス 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 -

〔学会発表〕 計0件

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
主たる渡航先の主たる海外共同研究者	チャンヨン キム  (Changyoung Kim)	韓国科学院・Center for Correlated Electron Systems・Professor	

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		
韓国	IBS-CCES	ソウル国際大学	