

令和元年6月24日現在

機関番号：15401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2018

課題番号：16K13823

研究課題名(和文)軌道角運動量を持つ光とスピン分解光電子分光法を用いた新測定手法の模索・開発

研究課題名(英文) Search and development of new method to utilize spin- and angle-resolved photoemission with orbital angular momentum light

研究代表者

宮本 幸治 (Miyamoto, Koji)

広島大学・放射光科学研究センター・助教

研究者番号：50508067

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、光渦を利用したスピン角度分解光電子分光測定の実験を行うことが目的である。スピン角度分解光電子分光測定は、固体中の電子の運動量、エネルギー、スピンを完全決定できる有力な測定手法である。本研究の主目的として、特に、軌道角運動量をもった光渦による励起過程は多極子遷移を引き起こす事が可能か否かが挙げられる。その問題に解を出すために、まずは光渦の発生およびそれを効率よく利用するシステムの構築が必須であった。そこで、既成品の6 eVレーザーを用いて、光渦を発生させ、さらに、光渦の効果を向上させるため、レーザー光のスポットサイズを集光限界まで近づけた。しかし、多極子遷移の痕跡は観測できていない。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の主目的として、特に、軌道角運動量をもった光渦による励起過程は高次の遷移(多極子遷移)を引き起こす事が可能か否かが挙げられるが、もし、このような高次の遷移過程が優位になれば、光渦の軌道角運動量および光の偏光性の両方を利用することで軌道選択遷移過程を自由に選び、実験が可能となる。究極的には、その電子構造がどのような軌道が支配的かというのを完全決定で切る可能性を秘めており、今後の電子構造解析の究極測定手法になる可能性を秘めている実験手法である。そのため、このような効果の観測が成功すれば、今後の電子構造研究の促進をはじめ、未知の物質の物性研究に大きな行件をもたらすことが期待される。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this research is to explore spin angle-resolved photoemission spectroscopy measurements using orbital angular momentum (OAM) light. Spin angle resolved photoemission spectroscopy is a powerful method to determine the momentum, energy and spin of electrons in solids. The main purpose of this research is, in particular, whether the excitation process of photoelectron by OAM light can cause multipole transition. In order to resolve the question, it was first necessary to generate OAM light and construct a such system. To efficiently uses OAM light, the spot size of the laser beam was reduced up to the focusing limit. However, we cannot be successful to find multipole transition yet.

研究分野：表面・固体電子構造

キーワード：OAM光 スピン角度分解光電子分光 多極子遷移

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

光が真空中や媒質中を伝搬する際に通常の光とは別に軌道角運動量 (OAM) を運ぶ新奇性質がレーザー光学研究分野において近年大きな注目を集めていた [D. G. Grier, Nature 424, 810 (2003).](図 1 参照)。研究開始当時、広島大学の佐々木教授が理論的に放射光でも OAM 光が発生できるということを見だし [S. Sasaki et al., Phys. Rev. Lett. 100, 124801 (2008).]、申請者との共同研究[M. Katoh et al., Scientific Reports 7 6130 (2017)]によってその存在が確認された(図 2 参照)。OAM 光の利用は、X 線吸収分光等では物性研究の手法が理論的に提案されているが、実証には至っていない [M. van Veenendaal et al., Phys. Rev. Lett. 98, 157401 (2007).]。さらに、電子構造を直接観測できる非常に強力な測定手法である光電子分光法については、実験はもとより理論的な考察すら行われておらず、この分野では OAM 光の存在すら認知されていないのが現状であった。

また、申請者は、これまで電子スピン構造を直接観測できるスピン分解光電子分光測定法を主軸に、放射光の偏光性を利用した研究を展開してきた。これまでの研究では、通常の光 (軌道角運動量:  $l = 0$ ) をの電場による偏光性を利用した光電子の選択則は双極子遷移に支配されている。このような、双極子遷移において、円偏光を用いることで偏向電場ベクトルに影響を受けた電子スピンの変位を観測することに成功している [K. Miyamoto et al., Phys Rev. B 93, 161403 (2016), H. Wortelen et al., Phys. Rev. B 91, 115420 ]。

一方、本研究で用いる OAM 光 ( $l = 1$ ) では、遷移確率強度の独自の計算から、双極子遷移ではなく四重極子遷移(高次極子遷移)が支配的となることが期待され、これまでの選択則とは異なることが期待されてきたが、実証はされていなかった。

### 2. 研究の目的

申請者は、広島大学の既存の装置である真空紫外レーザー光源 ( $h\nu = 6 \text{ eV}$ ) にスパイラル位相子を装備させることで OAM 光を発生させ、その光をスピン分解光電子分光装置の励起光源として用いることで(図 3 参照)、高極子遷移が真に引き起こされているか否かを検証することを目的に研究を開始した。また、OAM 光がこれまで観測できなかった情報を引き出せる強力な新奇プローブ光として活用できることが明らかとなれば、光学測定分野に一石を投じるだけでなく、これまで観測が困難であったすべての軌道対称性ごとの電子構造の直接観測等が可能になる。これは、物質科学研究において大きなインパクトを与えると期待される。以上のことから、本研究の目的は、1) OAM 光を作成し、光電子分光で多極遷移が支配的になるかを明らかにする

こと、2) OAM 光という新奇プローブを利用することで新たな情報が得られるかを実験的に解明することの 2 点に集約される。

### 3. 研究の方法

本研究は、申請者が既に導入された高効率スピン分解光電子分光装置に、広島大学放射光科学センターにある既存の可変型真空紫外レーザー励起光源 (Spectraphysics 社製) を組み合わせる。その際、低エネルギー励起光源用にカスタマイズし、再度立ち上げる必要がある。さらに、そのレーザーの光学系に 6eV 専用スパイラル位相子を組込むことで軌道角運動量をもつ光 (OAM 光) を作成し、光電効果によって観測される電子スピン構造が OAM 光と OAM 光でない場合でどのように変化するかを観測することで検証する。本研究では、タングステン(110)基盤の垂直放出の頂電子のスピン成分の面内回転依存性を観測すると、図 4 で示したような結果が得られることが予想されたため(図 3 参照)、この実験を行うことで多極子遷移が起きているか否かを調べる事にした。また、光電子強度も光の軌道角運動量のあるなしで変化することが期待できるので、その変化を観測することを目指した。

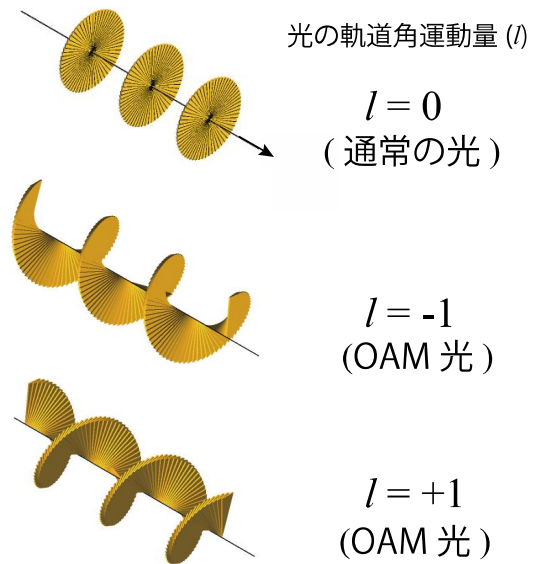


図 1 軌道角運動量依存した光 (OAM 光)

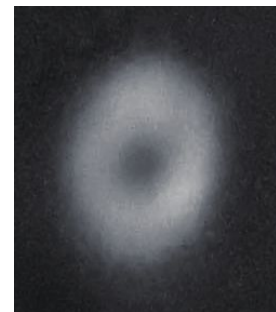


図 2 放射光から発生した OAM 光

予想される電子スピン偏極度の面内角依存性  
 [W(110)の表面状態の垂直放出光電子の場合]

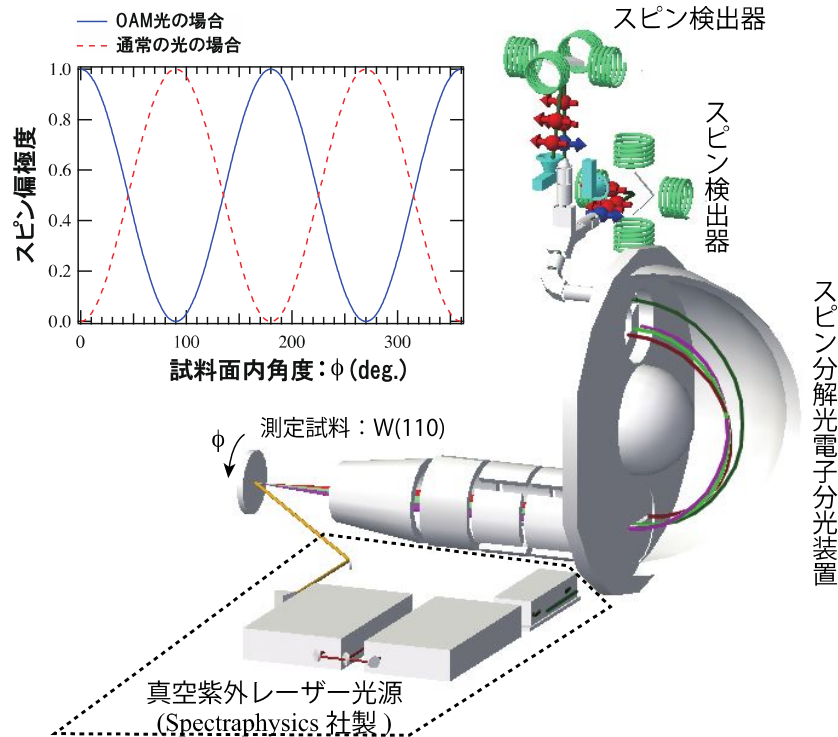


図 3 レーザー光源とスピン分解光電子分光装置概略図

#### 4. 研究成果

まずは、レーザー光源を導入後、スピン分解光電子分光装置の立ち上げを行った。しかし、レーザー光源が安定せず、立ち上げに時間がかかった。低エネルギーレーザーを用いたため、光電子アナライザーのレンズ系の調整を行い、バンド分散を観測することに成功した。その後、スパイラル位相子をレーザー光源に組み込み、干渉実験を行った。ナイフエッジによる軌道角運動量に依存した干渉パターンを見ることに成功し、その後、それを用いた光渦の多極子励起過程の痕跡の観測を行ったが、観測することはできなかった。基本的に軌道角運動量 0 と +1, -1 の場合でスピン偏極度や光電子強度の変化が観測できなかった。また、光渦の効果を最大限に生かすためにビームサイズの極小化を光の回折限界まで行い、5 μm 以下までビームスポットサイズを絞ることに成功した。この光渦による多極子励起過程が観測できなかった理由として、励起時の電子が、光の軌道成分であるポルテックスを感じてそれをコヒーレント励起する必要があるが、低エネルギーではそのビームスポットサイズが 1 μm 程度であるため、電子がこの範囲でコヒーレントな状態つまり散乱やその他の相互作用を受けずに光から受け取った軌道成分をそのまま受け取る必要があることがここ最近の研究で示唆されている。また、電子の平均自由行程は物質に依存するが精々長くても 100nm オーダーであるため、今のスポットサイズでは、光渦による多極子励起過程は観測することが困難であることが分かってきた。このような研究を今後続けていくには、スポットサイズが数 10nm 以下にする必要があると予想される。しかし、レーザー光源などを用いた低エネルギー励起光ではその波長が数 100nm オーダーであるため、光の回折限界も波長と同程度となり、困難である。そのため、光の波長が数 nm オーダーである軟 X 線領域まで励起光源のエネルギーを上昇させる必要があることが示唆される。このようなエネルギー領域の励起光源に軌道角運動量をもたせるためには、低エミッタンスの放射光源が必須であり、現状で研究が可能な施設は日本には存在しない。また、その研究過程でビームサイズの最小化の副産物として、PbBi<sub>4</sub>Te<sub>4</sub>S<sub>3</sub> の研究が成功したので、これ以降ではそれについて言及する。

PbBi<sub>4</sub>Te<sub>4</sub>S<sub>3</sub> は、トポロジカル絶縁体として理論的に示唆されていた。この物質の結晶構造は、図 4 に示す様に 5 層 (Te-Bi-S-Bi-Te) と 7 層 (Te-Bi-S-Pb-S-Bi-Te) の層が交互に並んでいる構造を示し、5 層と 7 層の間はファールワールス力の弱い結合で結びついているた

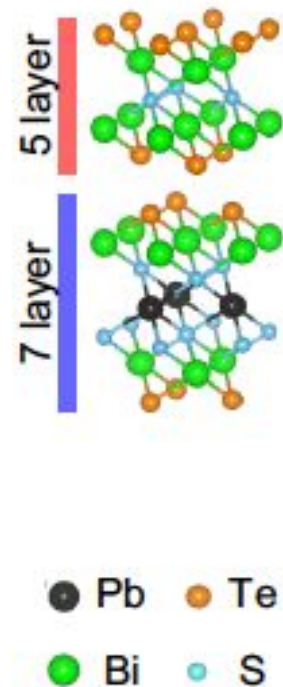


図 4 PbBi<sub>4</sub>Te<sub>4</sub>S<sub>3</sub>の結晶構造

め、サンプル表面を得るためにへき開を行うと、表面が5層のものと7層のものを行った具合に2種類の表面層が現れることが期待される。

そこで、我々は、まず世界有数の放射光源施設の一つであるイタリアのエレットラにて放射光を利用した角度分解光電子分光測定を行った。そのビームサイズは大きく見積もっても 100  $\mu\text{m}$  サイズである。その結果、2つのトポロジカル絶縁体に起因した直線的なバンド分散を観測するに至った。場所を変化させてもこの2つのディラック電子は観測されており、試料面直方向に配向な波数の依存性がないことからこの観測された電子構造が表面由来であることを確認した。一方で、バンド計算では、表面が5層の場合と7層の場合で分散形状の僅かな違いがあり、それらが分離観測できないため、2重のディラック表面電子状態が観測されていると結論づけた。これは、この2種類の表面層のドメインサイズが100  $\mu\text{m}$  以下であることを如実に語っている。また、放射光のエネルギー依存性を用いることで、この2重表面ディラック電子をある程度選択的に観測することを見だし、この励起光エネルギー依存性を用いたスピン角度分解光電子分光測定を行うことで、それぞれ観測された表面ディラック電子がスピン偏極していることを明らかにした。しかし、2重のスピン偏極ディラック電子が2つの異なる表面から出ているという仮説の実験的証拠を得るに至っていなかった。このためには、異なるドメインサイズよりも励起光スポットサイズを微小化することが必須であった。そこで、本研究で行ったレーザー光源の微小化レンズを利用し、2重スピン偏極ディラック電子のバンドがドメイン依存した効果か否かを明らかにするためにレーザー分光角度分解光電子分光装置を用いて研究を行った。

その結果を図5に示す。測定は、数 $\mu\text{m}$ 程度でマニピュレーターを制御し、場所依存性測定を行った。ドメインサイズは、場所ごとにサイズが異なるようで、丹念な探索によって2つの明らかにエネルギー位置の異なるディラック表面電子の直線的な分散形状が現れた。これらを重ねると、放射で測定した結果およびレーザー光源で測定した別の場所のデータをよく再現しており、ドメインの異なる表面状態を反映していることが明らかとなった。このようにPbBi<sub>4</sub>Te<sub>4</sub>S<sub>3</sub>の $\mu\text{m}$ オーダーサイズの微小ドメインごとの電子構造を観測することに成功したのは、世界初である。また、異なる2つの表面のうち表面が7層で構成されるドメインでは、スピン偏極ディラック表面電子が、比較的深い位置に占有状態が存在し、例えば、表面が汚染されたとして、電子構造のエネルギー位置のシフトに、この表面電子構造が保たれるということが理論的に示唆されていた。そこで、酸素暴露の前後の角度分解光電子分光測定を行うことで、この理論的予想の確証を得ることに成功した。このように、かなりチャレンジングなテーマでありながらも業績を治めることに成功した。

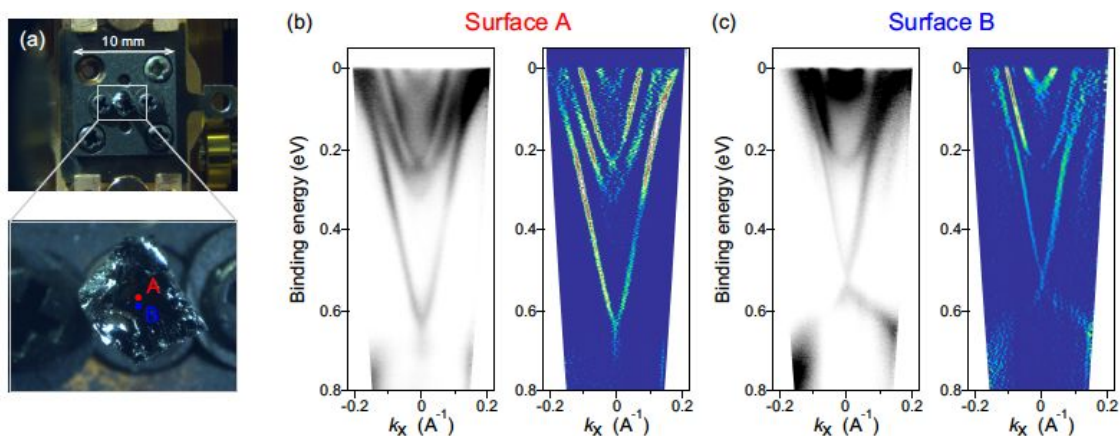


図5 異なるドメインサイズの電子構造依存性。200  $\mu\text{m}$  異なる位置の電子構造の切り分け観測に成功。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1 件)

査読あり

K. Sumida et al., “Enhanced surface state protection and band gap in the topological insulator PbBi<sub>4</sub>Te<sub>4</sub>S<sub>3</sub>”, *Physical Review Materials* 2, 104201 (2018).

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。