

萌芽課題研究報告書
光電子回折・分光法を用いた軌道角運動量光の実証実験
Characterization of the orbital-angular-momentum light by using
the photoelectron diffraction / spectroscopy

後藤 謙太郎^{A*}、 松井 文彦^A、 松本 拓^A、 橋本 美絵^A、
西嘉山 徳之^A、 松井 公佑^A、 前島 尚行^A、 松下 智裕^{B†}
加藤 有香子^B、 大門 寛^A

課題番号 2009B1706

1 Introduction

軌道角運動量 (Orbital angular momentum: OAM) 光は、1992 年に Allen[1] らによって物理特性について理論的な予測が発表されて以来可視光領域で分子操作や通信に幅広く研究されている光である。円偏光はヘリシティ $\sigma = \pm 1$ という角運動量をもつが、OAM 光はそれとは別に軌道角運動量 ($l=1,2,3,\dots$) を持つ。従来の円偏光 X 線光源では、k 吸収端での電子の遷移過程が励起される軌道は $1s \rightarrow 2p$ である。しかし、Michel Van Veenendaal[2] により、OAM 光を用いた場合 $1s \rightarrow 3d$ になるといった理論計算の結果が報告されている。OAM 光の角運動量は軌道角運動量であり、その値は円偏光に比べ大きな値を持ち得るので、従来の双光子遷移と異なる選択則となる。A. Picon 等によって OAM 光の選択則が以下のように予想されている [3]。

$$|\Delta L| \leq |l| + 1, \Delta M = l \pm 1, \quad \text{with} \quad \Delta L + |l| + 1 = \text{even}, \quad (1)$$

軟 X 線領域における OAM 光の発生方法については、佐々木らの理論的な予測と提案 [4, 5] があるが、いまだに実験的に実証されていない。佐々木らによって提案されている OAM 光の発生方法は、Advanced Polarized Light Emitter (APPLE) アンジュレータを用いて発生されるものである。また SPring-8 BL25SU に設置されているような円偏光アンジュレータを利用しても発生させることができると考えられている [4, 5]。円偏光アンジュレータで円偏光を発生させると、発生した光には高調波の成分が混じる。N ($N=2,3,\dots$) 次の高調波の光は、OAM 光になりうるといった理論計算の報告がなされている [4, 5]。円偏光アンジュレータの高調波を用いることで OAM 光を利用することができると考えられる。

本研究で用いる光電子放出角度分布 (Photoelectron Intensity Angular Distribution: PIAD) には、励起原子か

* 奈良先端科学技術大学院大学^A

† SPring-8/JASRI^B

ら見た周りの原子の方向に前方収束ピーク (Forward Focusing Peak: FFP) とよばれる強いピークが現れる。FFP の方位から、励起原子からみた散乱原子の方位を求めることができる。円偏光励起の場合、角運動量保存則により励起原子と散乱原子の原子間距離に反比例して、FFP シフトが観測される。この FFP シフトと人間の視差角の同一性を利用することで原子立体写真を取得することができる [6]。また、この FFP シフトは、放出される光電子の持つ軌道角運動量について評価することができる数少ない手法の一つである。

Daimon らによって $\pm 60^\circ$ の取り込み角度で一度に歪なく PIAD を取り込むことができる二次元表示型鏡面分析装置 (Display-type Spherical Mirror Analyzer: DIANA) の開発・発展が行われてきた [7]。代表的な研究結果としては、円偏光光電子回折を利用して原子配列を直接立体的に可視化する立体原子写真法 [6] や Auger 電子回折と XAFS/XMCD を組み合わせ Auger 電子回折パターン中に現れる FFP を利用し電子状態を原子層ごとに測定する回折分光法の開発 [8] などがある。他に Fe 単結晶を用いて、軟 X 線励起による価電子帯の PIAD パターンの測定を行い、内殻の PIAD パターンとの比較を行うことで多重散乱効果などを取り除き、Fe 3d 軌道における有効磁気量子数の算出に成功している [10]。

本報告書では、今まで SPring-8 BL25SU に設置されている DIANA を用いて研究されてきた Fe 単結晶を試料として用い、高調波の光がどのような性質を持っているのかについて二次元光電子回折法を用いて検討した結果について述べる。

2 Experimental

本研究課題では、BL25SU に設置してある DIANA を用いた。試料として Fe (111) 単結晶を用い、円偏光と二次の高調波の両方を用いて Fe 3p PIAD の測定を行った。

実験の際に使用する円偏光アンジュレータについて説明する。BL25SU に設置されている円偏光アンジュレータは、左右の円偏光を使い分けることができるように二台設置されていることから、ツインヘリカルアンジュレータと呼ばれている [11]。ヘリカルアンジュレータは、電子をらせん状の軌道に沿って運動させて円偏光を得る。アンジュレータの上下に各 3 列の磁石列が設置されており、中央磁石列で垂直磁場、両側の磁石列で水平磁場を作り出すことによってらせん磁場を形成する。円偏光アンジュレータ内の磁石をスライドさせることによって右回り円偏光 σ_- (ID1) および左回り円偏光 σ_+ (ID2) を生成することが可能である。ID1 は磁石列の位置が “30 mm モード” に ID2 は “90 mm モード” に設置し、それぞれ σ_- 、 σ_+ のヘリシティの光を発生させている。

円偏光の実験の時には、分光器の一次の光エネルギーが $h\nu=661$ eV となるようにセットし、内殻 Fe 3p からの光電子の運動エネルギーが 600 eV となるようにした。高調波の実験では、分光器の設定を円偏光の時と同じに設定し、光エネルギーを $h\nu=661$ eV とし、内殻 Fe 3p からの光電子の運動エネルギーが同じく 600 eV となるようにした。アンジュレータの設定はその半分の 330.5 eV 付近で一次が強くなり 661 eV で二次の高調波が強くなるように設定し、ID1 と ID2 のギャップの値は、それぞれ 37.1、37.2 とした。

Fe (111) の清浄表面出しには、論文にも記載されている方法と同様の方法を用いた [10]。Ar スパッタを 3 時間と 500 °C における低温アニールを 1 セットとしてそのサイクルを数回繰り返し表面処理をした。その後表面状態については、X-ray photoelectron spectroscopy (XPS) を用いて確認を行った。

光の入射角度は試料法線に対して 45° で入射を行い、測定の際には kicker を用いて測定を行っている [11]。実験結果は、同じ光エネルギーで測定を行った Ta の PIAD をバックグラウンドとする。得られた実験データをバックグラウンドの PIAD パターンで割る処理を行った後に、それぞれの PIAD パターンを規格化したも

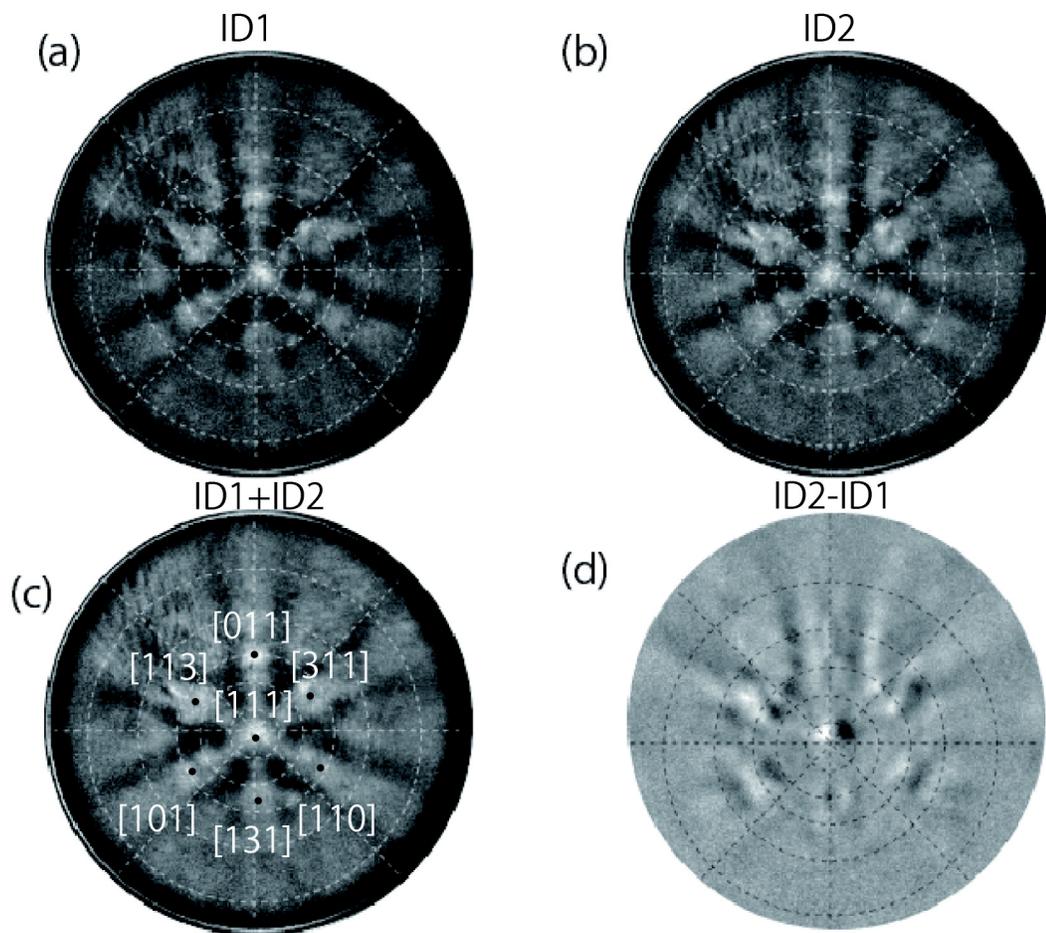


図1 (a)、(b)はそれぞれ ID1、ID2 の円偏光励起の Fe 3p PIAD である。光電子の運動エネルギー $E_k=600$ eV の場合であり光エネルギー $h\nu=661$ eV である。(c)ID1 と ID2 のパターンを足し合わせた Fe 3p PIAD である。(d)ID2 から ID1 のパターンを引いた円二色性の PIAD である。

のを実験結果として表示している。

3 Results and discussion

Fig. 1 に Fe (111) 単結晶を試料とし、左右円偏光を用いて測定をした Fe 3p PIAD を示す。運動エネルギーは 600 eV の場合について測定を行っている。光エネルギーは $h\nu=661$ eV であり阻止電圧は運動エネルギーの 5% とした。Fig.1 (a)、(b) はそれぞれ ID1、ID2 で励起した場合の Fe 3p PIAD である。ID1、ID2 の PIAD を足し合わせたものと引き算したものが Fig.1(c)、(d) になる。PIAD 中に現れる FFP について、Fig. 1(c) で方位の帰属を行った。Fe 3p PIAD の中心に、[111] 方向の散乱原子からの前方散乱ピークが現れているのが観測されている。また Fig.1 (d) に示されている円二色性 (Circular dichroism in the angular distribution: CDAD) のパターンより FFP のシフトが観測されていることが分かる。Fig.2 に二次の高調波励起 (2nd harmonics) の

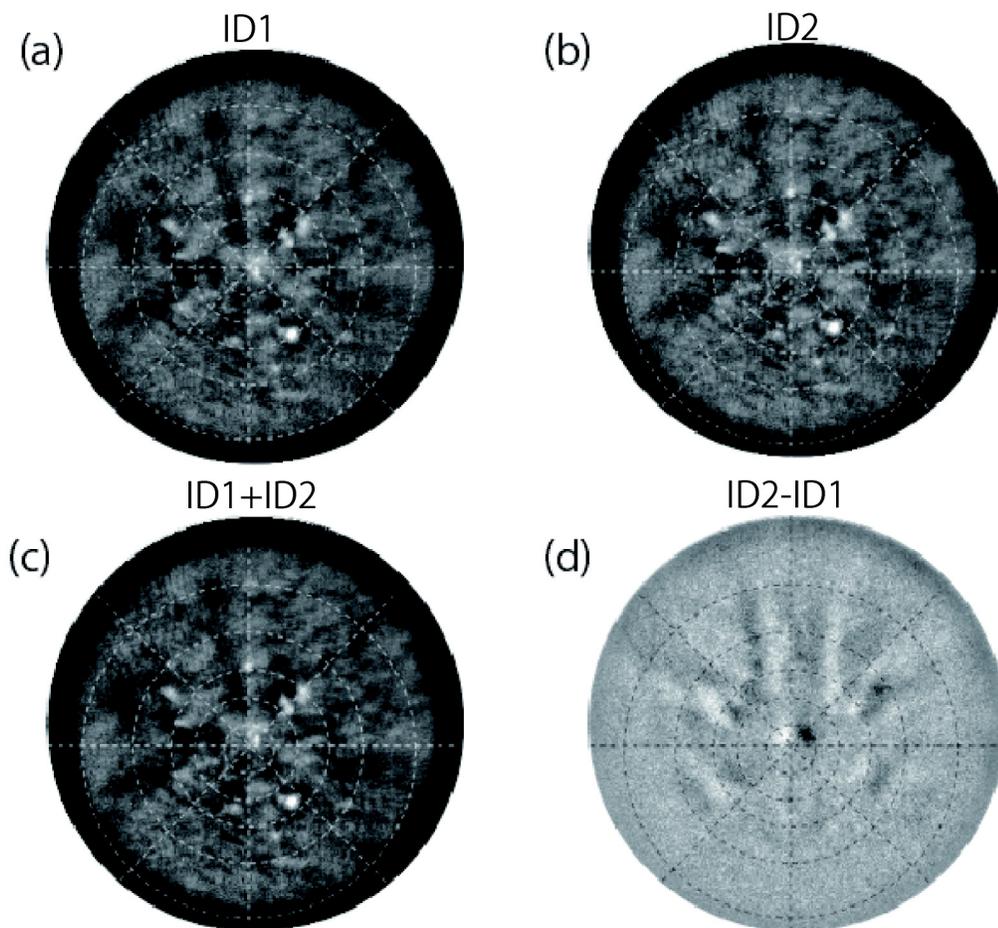


図2 (a)、(b)はそれぞれ ID1、ID2 を一次の光に合わせて二次の高調波で励起した Fe 3*p* PIAD である。光電子の運動エネルギー $E_k=600$ eV の場合であり、二次の高調波光のエネルギーは $h\nu=661$ eV である。(c)ID1 と ID2 のパターンを足し合わせを行った Fe 3*p* PIAD である。(d)ID2 から ID1 のパターンを引いた円二色性の Fe 3*p* PIAD である。

Fe 3*p* PIAD を示す。先ほどと同様に Fig.2 (a)、(b) に ID1、ID2 で励起した PIAD パターンを示し、それぞれの足し合わせと差分の PIAD は Fig.2 (c)、(d) となる。どちらの場合についても PIAD の中心に [111] 方向からの FFP が観測されていることが確認できる。

Fig.3 に、Fig.1 (d)、Fig.2 (d) に示されている差分の PIAD について (11-2) に沿った [111] FFP 強度の方位角度依存性について示す。円偏光励起と二次の高調波励起のどちらの場合においても差分のピークは似た形状になることが Fig. 3 より分かる。それぞれのピークについてガウスフィッティングを行い、ピークの現れる位置について検討をした。その結果同じ場所にそれぞれのピークトップがくることが分かった。また Fig. 4 (b)、(d) で示されている ID1 と ID2 の PIAD パターンは形状がよく似ていることが分かる。Fig.1 (d)、Fig.2 (d) に示されているそれぞれの CDAD のパターンは強度の違いはあるが形状については、よく似たものになってい

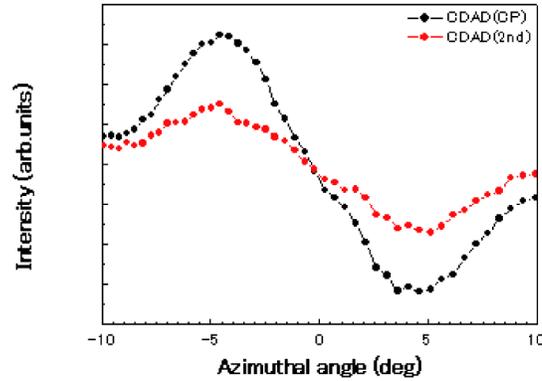


図3 [111]FFPの円二色性について、ラインプロファイルした結果である。黒い線と赤い線はそれぞれが円偏光と二次の高調波の場合の円二色性のスペクトルとなっている。

ることが分かった。

Fig. 4 に先ほどと同様にして Fig. 1 (a)、(b) と Fig. 2 (a)、(b) に示されているそれぞれの PIAD の [111] FFP 強度の方位角度依存性について調べた結果を示す。Fig.4 (a)、(b) に円偏光と二次の高調波の場合について、ラインプロファイルしたものを示す。Fig. 4 のグラフより [111] FFP のシフトの見積もりを行い以下の式を用いて、FFP シフトから得られた有効磁気量子数の値と理論値との比較を行った。

$$\Delta\phi \cong \frac{m^*}{kR \sin^2 \theta} \quad (2)$$

上記の式において、 $\Delta\phi$ は FFP のピークシフト、 m^* は有効磁気量子数について、 k は波数、 R は励起原子と散乱原子の原子間距離を表している。また有効磁気量子数の値が既知の場合上記の式を用いることで励起原子と散乱原子の原子間距離を算出することもできる [5-6]。

Fig. 4 (a) より円偏光励起の場合の [111] 方向の FFP シフト量は、 $\Delta\phi=2.63\pm0.50^\circ$ と見積もられる。(2) 式を用いて、算出した FFP シフトの理論値は $\Delta\phi=4.67^\circ$ となる。実験値は予測されている値より 0.51 倍になった。これは、多重散乱と第一近接原子の直ぐ後ろにある第二原子の影響を受け実験結果が理論値よりも小さくなったものと考えられる。実験結果より求められる有効磁気量子数の値は、 $m^*=0.7\pm0.1$ となった。理論計算の値は、 $m^*=1.28$ であるので先ほど述べた通り多重散乱と第二原子などの影響を受けて小さく見積もられているものと考えられる。

二次の高調波励起の場合においても同様の解析を行った。Fig. 4(c) より [111] 方向に現れる FFP シフト量は $\Delta\phi=0.91\pm0.50^\circ$ と見積もられた。(2) 式より有効磁気量子数の値 m^* は $m^*=0.2\pm0.1$ であり、円偏光励起の場合での理論計算と比較をしても有効磁気量子数の値は 1/6 倍程度小さいものとなった。この結果より、FFP がシフトしない要因になる磁気量子数 m の成分が多く含まれることがわかった。また得られた実験結果は円偏光励起の場合と比べ、FFP シフト量が 1/3 倍程度となった。しかし、二次の高調波励起の Fe 3p PIAD に現れる [111] 方向の FFP のピークシフト量は、多重散乱と第二原子などの影響を考慮しても円偏光励起の理論

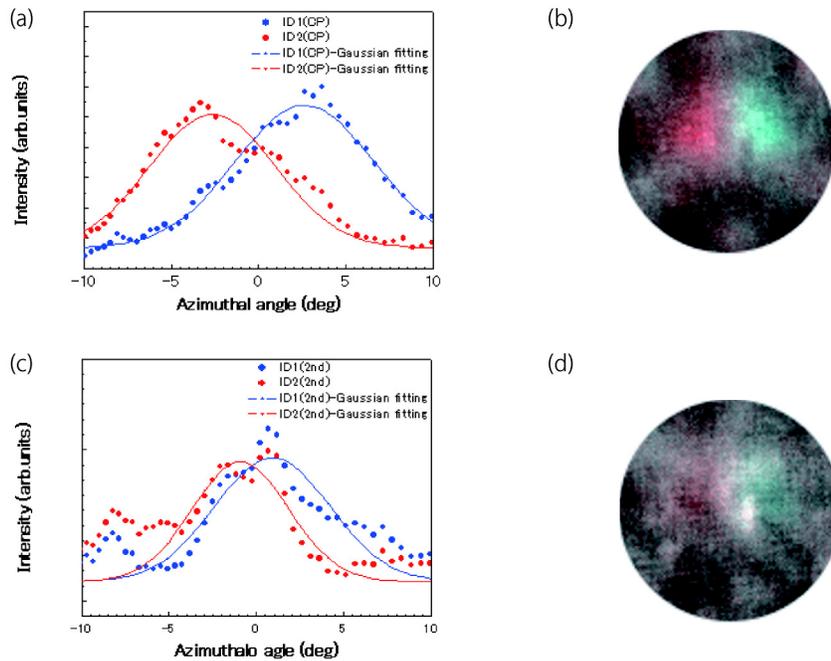


図4 (a) 円偏光励起の場合の [111] FFP に対する ID1 と ID2 の FFP のラインプロファイルである。(b) 円偏光励起の PIAD に現れる [111] FFP について、ID1(青)、ID2(赤) で表示し重ね合わせたものを表示している。赤青メガネを使用すれば立体原子写真として利用することができる。(c) 二次の高調波励起の場合の [111] FFP に対する ID1 と ID2 のラインプロファイルである。(d) 二次の高調波励起の PIAD に現れる [111] FFP について、ID1(青)、ID2(赤) で表示し重ね合わせたものである。

値とは合わないことが分かった。

4 Conclusion

二次の高調波を用いた Fe 3p PIAD の測定に成功した。円偏光励起の場合と二次の高調波励起の PIAD の比較を行い、[111] 方向の FFP のシフト量が異なることが分かった。FFP シフトより算出される有効磁気量子数 m^* の値は、二次の高調波励起の方が 1/4 倍程度小さいことが分かった。また CDAD のパターンは円偏光と二次の高調波励起のどちらの場合もよく似ていることが分かった。現在、二次の高調波励起の有効磁気量子数 m^* がどのような磁気量子数 m で構成されているか検討を行っている。その結果二次の高調波が OAM 光になりうるかどうかについて明らかにする予定である。

参考文献

- [1] L. Allen, M. V. Beijersbergen, R. J. C. Spreeuw, and, J. P. Woerdman, *Phy. Rev. Lett.* **45** (1992) 8185.
- [2] M. V. Veenendaal, and L. McNulty, *Phy. Rev. Lett.* **98** (2007) 157401.
- [3] A. Picon, J. Mompart, J. R. Vazquez de Aldana, L. Plaja, G. F. Clavo, and L. Roso, *Optics Express.* **18** (2010) 3660
- [4] S. Sasaki, and I. McNulty, *Phy. Rev. Lett.* **100** (2008) 124801.
- [5] S. Sasaki, and I. McNulty, R. Dejus, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A.* **582** (2007) 43.
- [6] H. Daimon, *Phys. Rev. Lett.* **86** (2001) 2034.
- [7] H. Daimon, *Rev. Sci. Instrum.* **59** (1988) 545.
- [8] F. Matsui, T. Matsushita, Y. Koto, M. Hashimoto, K. Inaji, F.Z. Guo, and H. Daimon, *Phys. Rev. Lett.* (2008) 207201.
- [10] K. Goto, F. Matsui, T. Matsushita, Y. Kato, and H. Daimon: *J. Phys. Soc. Jpn.* **77** (2008) 103301.
- [11] T. Muro, T. Nakamura, T. Matsushita, H. Kimura, T. Nakatani, T. Hirono, T. Kudo, K. Kobayashi, Y. Saitoh, M. Takeuchi, T. Hara, K. Shirasawa, and H. Kitamura: *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **144** (2005) 1101.