

論文の内容の要旨

高繰り返し 10.7 eV 超短パルスレーザーを用いた
時間・スピン・角度分解光電子分光装置の開発とスピン
偏極電子状態における超高速光励起ダイナミクスの研究
(Machine development of time-, spin- and angle-resolved
photoemission spectroscopy with a 10.7-eV ultrashort pulsed laser
at high repetition rate and the study of photo-induced ultrafast
dynamics in spin-polarized electronic states)

氏名 川口 海周

スピン・角度分解光電子分光 (SARPES) は、固体における占有電子状態のエネルギー・運動量の情報に加えて、そのスピン偏極状態までを明らかにする強力な実験手法である [1]。さらに、SARPES とポンプ・プローブ法を組み合わせた時間・スピン・角度分解光電子分光 (Tr-SARPES) 実験ができれば、運動量空間における超高速なキャリア・スピンダイナミクスの観測が可能となり、トポロジカル物質やスピンバレー物質などにおける新しい光学応答が明らかになると期待できる。しかしながら、時間分解とスピン分解測定を同時に行うためには技術的な困難が存在する。

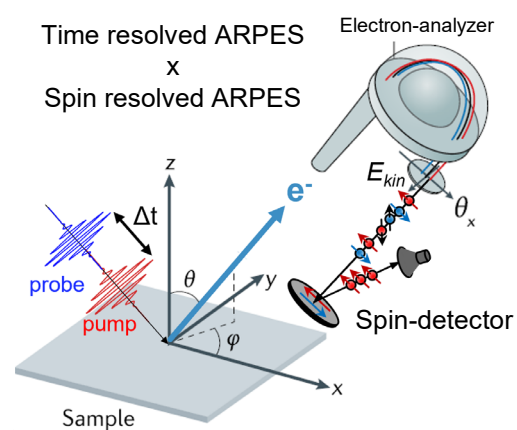


Figure 1 : Tr-SARPES 測定の概略図。
ポンプ・プローブ法による時間分解と
SARPES 測定を同時に行う。

まず、時間分解測定で光励起した数少ない励起電子を対象に検出効率の低いスピン分解測定 [2] を同時に行うためには、より大きな光強度で光電子数を稼がなければならない。一方で、ブリルアンゾーン全体をカバーする幅広い運動量空間で測定するためには高い光子エネルギーが得られる高次高調波が必要となるが、一般に kHz クラスの低繰り返し光源となるため、スピン分解測定に必要な光強度にするとパルスあたりの空間電荷効果が増強されてしまい、本質的なスペクトルが得られなくなる [3]。

本研究では、上記した問題点を克服し、全ブリルアンゾーン測定を可能とする前例にない Tr-SARPES 装置を新たに開発した。本装置では Fe(001)-*p*(1×1)O ターゲットを用いた超低速電子線回折 (VLEED) 型の高効率なスピン検出器を備えた SARPES システム [4] をベースとする。時間分解測定には、高繰り返し (1 MHz)・大強度を兼ね備えた Yb ファイバーベースの CPA (チャープパルス増幅) レーザー [5] を新たに作成し、それを基本波として高次高調波発生させた 10.7 eV レーザーをプローブ光として用いた。これらによって、高いスピン検出効率・高繰り返し・大強度を兼ね備えた装置となり、非占有スピン偏極バンドとその超高速ダイナミクスの観測に十分なスピン・光電子シグナルを得ることに成功した。加えて、開発した Tr-SARPES 装置を用いて観察されたトポロジカル絶縁体 Sb₂Te₃ の非占有スピン偏極表面状態を報告する。バルク伝導帯およびトポロジカル表面バンドの非占有状態へポンプ光励起されたキャリアがそれぞれ異なるダイナミクスを示す振る舞いが観測され、Tr-SARPES 測定から非占有状態のヘリカルなスピン構造を実験的に決定することに初めて成功した [6]。これらの研究結果は、これまで非効率とされていた Tr-SARPES 測定に対して本研究の新たなアプローチが成功していることを意味しており、今後の光スピントロニクス研究の進展が期待できる。

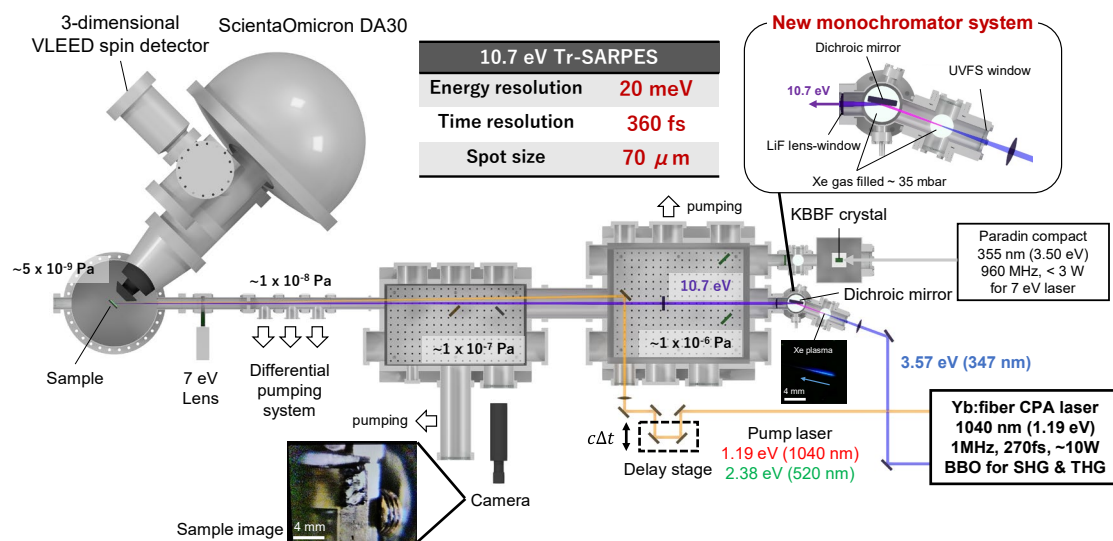


Figure 2 : 開発した Tr-SARPES ビームラインと分解能

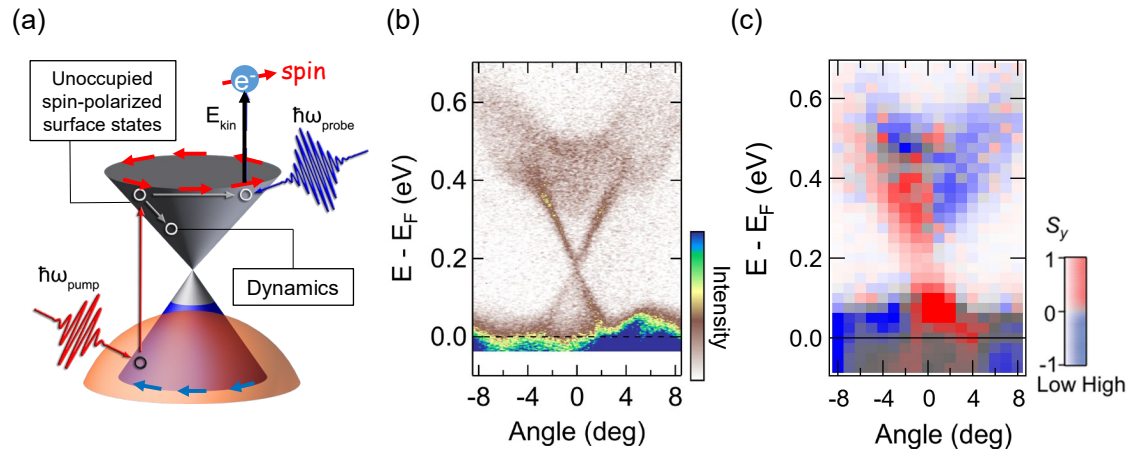


Figure 3 : (a) Sb_2Te_3 のスピン偏極電子状態と Tr-SARPES 測定の概略図。(b) 1.19 eV ポンプ後 500 fs の非占有状態 ARPES 像。(c) (b) に対応する Tr-SARPES 像。非占有のトポロジカル表面状態におけるヘリカルなスピン構造の観測に成功した。

- [1] T. Okuda and A. Kimura. J. Phys. Soc. Jpn. 82, 021002 (2013).
- [2] T. Okuda. J. Phys. Condens. Matter 29, 483001 (2017).
- [3] L. P. Oloff *et al.* J. Appl. Phys. 119, 225106 (2016).
- [4] K. Yaji *et al.* Rev. Sci. Instrum. 87, 053111 (2016).
- [5] Z. Zhao *et al.* Opt. Exp. 25, 13517 (2017).
- [6] K. Kawaguchi *et al.* (to be published).