

らせん状の波面をもつ電子波の生成, 伝播, 干渉

Production, Propagation and Interference of Electron Vortex Beam

齋藤 晃^a, 長谷川裕也^a, 内田 正哉^b

Koh Saitoh, Yuya Hasegawa and Masaya Uchida

^a名古屋大学エコトピア科学研究所

^b埼玉工業大学先端科学研究所

要 旨 本稿では, らせん状の波面をもつ電子波の物理的基礎を概説し, 最近われわれが行った電子らせん波の生成, 伝播および干渉についての結果を紹介する. 透過電子顕微鏡の照射レンズ系に FIB 加工したフォーク型回折格子およびスパイラルゾーンプレートを導入し, 試料上でのビーム径がナノメートルオーダーの電子らせん波を生成した. 特にスパイラルゾーンプレートをもちいた実験では, $\pm 90\hbar$ という大きな軌道角運動量をもつ電子らせん波が生成できた. また, 回折格子等を通じた電子がらせん波を形成するまでの伝播過程を観察し, その強度分布がフレネル伝播理論にもとづくシミュレーションときわめて良い一致を示すことを明らかにした. さらに2つの電子らせん波をもちいた干渉実験を行い, 互いの軌道角運動量によらずそれらが干渉することを見出した. この結果から, 軌道角運動量はスピンと異なり, 位置や運動量と同時に計測不可能な物理量であることが確認できた.

キーワード: 電子らせん波, 電子渦, 軌道角運動量, 位相特異点, 干渉

1. はじめに

2010年, 内田・外村によりらせん状の波面をもつ電子波の生成が報告された¹⁾. 真空中を伝播する電子は平面波または球面波であると認識していた多くの電子顕微鏡研究者にとって, この報告は衝撃的であり, この未知のプロープの可能性に対する期待から大きな注目を集めた. 発見後わずかの間に, Nature, Science 誌から3報の報告^{1~3)}があったことからその科学的新規性および重要性は伺えるであろう. 彼らの報告以来, この新しい電子ビームの物理的性質の解明, 応用を目指した研究が盛んになされている.

らせん状の波面をもつ波については, 光の分野では既に20年ほど前から研究が進められていた^{4,5)}. その光を照射した物体にトルクを与えることが実験的に確かめられ^{6~8)}, 現在では回転操作を行う光ピンセットに応用されている. またらせん波の軌道角運動量を量子ビット (N 状態なので quNit とよばれる) としてもちいる量子情報分野での応用^{9,10)}, ビームの中心に強度がゼロとなる暗点を利用した STED 等の超分解能顕微鏡への応用¹¹⁾, ビームの軌道角運動量および円環状の強度分布を利用したナノ加工¹²⁾, 天体観測におけるコロナグラフなど, さまざまな応用がなされている. 電子のらせん波の場合, 電子が電荷をもつことから磁気モーメント

を担うと考えられ, 磁場あるいは磁性体との相互作用を利用した磁気イメージングが期待される. また光に比べて波長が短く, 物質との相互作用が大きいことから, ナノメートルサイズの電子らせん波をもちいた微小領域の分析やイメージング, さらにナノ材料のマニピュレーションが期待されている.

内田・外村の第一報では, 厚さがらせん階段状に変化したグラファイト膜に電子平面波を入射し, 透過した電子の波面がらせん状になることを実験的に示した¹⁾. 彼らはグラファイトを透過した電子波とグラファイトを透過していない参照波をプリズムにより干渉させ, その位相変化からグラファイトを透過した電子波がらせん状の波面を形成していることを確認した. 厚さがらせん階段状に変化した試料はこれまでもたくさん電顕観察されていた訳で, この意味でらせん波はこれまでもたくさん生成されていたといえる. 内田・外村の発見は, 「らせん状の波面をもつ電子波が存在する」ということを世に知らしめたことといえるだろう. その直後, アントワープの Verbeeck らのグループは, フォーク型回折格子 (図 6 (d) および 6 (e) 参照) に電子平面波を入射することにより, その回折波としてらせん波が生成することを報告した. さらに彼らはこの回折格子をもちいて電子エネルギー損失磁気円二色性 (EMCD) の測定を行った²⁾. その後, 米国の McMorran らは刃状転位の分岐を25本に増やした回折格子を作製し, その4次回折波として, 軌道角運動量 $100\hbar$ のらせん波を生成した³⁾. そのような大きな軌道角運動量をもつらせん電子波は, 大きな磁気モーメントをもつと

^a 〒464-8603 名古屋市千種区不老町
TEL/FAX: 052-789-3596
E-mail: saito@esi.nagoya-u.ac.jp
2013年3月8日受付

考えられるため、試料との大きな磁気的相互作用が期待される。最近では、磁場との相互作用¹³⁾、電子らせん波と原子との非弾性散乱の散乱振幅¹⁴⁾やマルチスライス法によるらせん波の結晶中の伝播過程¹⁵⁾などが計算されている。

2. らせん波とは

らせん波は、以下の手続により平面波から作ることができる。平面波とは、平坦な波面（等位相面）をもつ波である（図1(a)）。進行方向は波面に垂直な方向である。平面波の進行方向に平行な直線 l を置く。その線を端とする半無限平面 P を考え、平面 P と平面波の各波面との交線に切り込みを入れる（図1(b)）。次に平面 P の裏側と表側にある波面を、平面波の進行方向に1枚分（つまり1波長分）ずらしてつなげる。このようにして作られるらせん状の面がらせん波の波面である（図1(c)）。

波面のずれ方は、トポロジカル数（またはトポロジカルチャージ）とよばれる指標で表す。トポロジカル数は整数であり、その符号および絶対値で、それぞれ波面のずれの向きおよびずれた波面の枚数を表す。図1(c)のらせん波のトポロジカル数は -1 である。格子欠陥の言葉でいえば、らせん

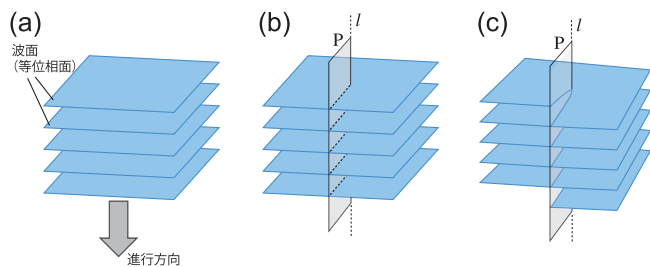


図1 平面波の波面の一部をずらして（らせん転位を導入して）らせん波を作る手順。(a) 通常の平面波。波面（等位相面）は進行方向に垂直で周期的に配列している。(b) 平面波の波面に垂直な直線 l を端とする半無限平面 P を重ねる。(c) 平面 P の表と裏にある波面を進行方向に（またはその逆方向に）ずらしてつなげる。

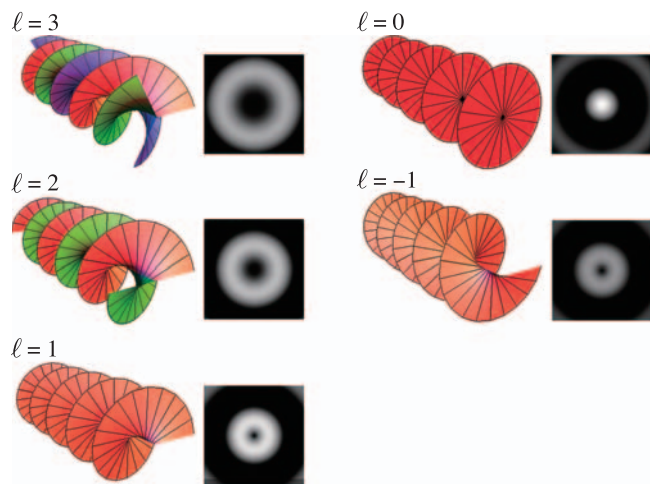


図2 トポロジカル数の異なるらせん波の等位相面。連続する波面を同じ色で示した。

波は「らせん転位を含む進行波」であり、トポロジカル数はバーガスベクトルに対応する。

図2にトポロジカル数の異なるらせん波の波面を示す。トポロジカル数 $l = \pm 1$ のらせん波は、中心軸のまわりを一周回ると進行方向に1波長分だけずれるらせん構造をもつ。トポロジカル数の符号によりらせんの回り方が反転している。 $l = 2$ のらせん波は、一周回ると波面が2波長分だけずれる。ずらしてつながる波面を同一の色で示すと、赤と緑の2つのらせん状の曲面が互いに交わらないように交互に重なり合っていることがわかる。この構造は、DNAがもつ2重らせん構造と類似している。同様に、 $l = 3$ のらせん波は3重らせんと呼べる構造をもつことがわかる。通常の平面波と同様に、進行方向に隣接する波面の間隔は波長である。波長が等しい場合、トポロジカル数が大きいほど中心軸（図1の直線 l ）に対する波面の傾きが大きくなる。らせん波のもっとも顕著な特徴は、中心軸上の強度がゼロとなることである。これは、直線 l 上では波の位相が不定となるためである。たとえば図2とは位相が異なる等位相面を描くと、中心軸のまわりに回転したような波面となるが、中心軸はどの等位相面にも含まれる。これは中心軸の位相が定まらないことを意味する。中心軸上の点は位相特異点とよばれる。

らせん波は軌道角運動量をもつとされる。軌道角運動量は、粒子的描像では、ある中心のまわりでの重心移動をとまう回転運動の大きさを表す。つまり、らせん波は、ちょうど太陽の周りを周回する惑星の公転運動（自転運動はスピン角運動量に対応）に相当する運動成分をもつ。らせん波の場合、中心力ポテンシャルがないにもかかわらず公転しているということに留意されたい(3章参照)。らせん波は進行波であり、したがって公転しながら並進していることになる。この進行方向は公転面に垂直である。つまり粒子の軌跡はらせんを描くことになる。図3(a)、3(b)および3(c)は、粒子的描像での平面波および（収束）らせん波の軌跡を表す模型である¹⁶⁾。2枚の水平の円盤が上下にあり、その外周に白いゴム糸が取り付けられている。円盤は中心を通る鉛直軸の周りで回転できるようにになっている。回転していない場合(図3(a))、

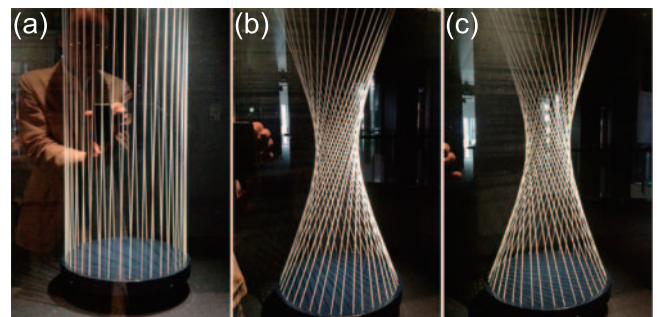


図3 平面波(a)およびらせん波(b),(c)の流線。進行方向を図の上方から下方へとすると、平面波の場合すべての流線は平行で一様であるのに対し、らせん波の場合、中心軸を迂回しながら進行する。

すべてのゴム糸は鉛直方向を向き、ちょうど円筒の側面に沿うように並ぶ。これは、波面上のどの位置でも進行方向が等しい平面波に相当する。図3(b)は、下の板を鉛直軸のまわりに180°回転したものである。各糸は中央付近で交差し合っている。もし糸どうしが重なり合えるなら、すべての糸は同一の中心をとって上下を結ぶ。これは通常の収束ビームの流線に相当する。図3(b)の模型では各糸が中心を迂回して上下を結んでいる。これは収束らせん波の流線を表すものである。図3(c)は、図3(b)とは逆向きにまわしたものであり、トポロジカル数の符号が反転したらせん波の流線を表す。

3. 電子らせん波の波動関数¹⁷⁾

自由空間（真空中）を伝播する電子の波動関数 Ψ は、以下の Schrödinger 方程式にしたがう。

$$-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2m} \Psi = E \Psi \quad (1)$$

ここで m は電子の質量、 E は電子の全エネルギー（ここでは運動エネルギーのみ）である。円柱座標系 (r, ϕ, z) で表わすと、この式は

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2}{\partial \phi^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right] \Psi = E \Psi \quad (2)$$

となる。

$$\Psi(r, \phi, z) = R(r) \Phi(\phi) Z(z) \quad (3)$$

として変数分離を行うと、 r, ϕ, z の各変数について以下の3つの方程式が導かれる。

$$\frac{\partial^2 R}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial R}{\partial r} + \left(\frac{2m}{\hbar^2} E_r - \frac{\ell^2}{r^2} \right) R = 0 \quad (4)$$

$$\frac{\partial^2 \Phi}{\partial \phi^2} = -\ell^2 \Phi \quad (5)$$

$$\frac{\partial^2 Z}{\partial z^2} = -\frac{2m(E - E_r)}{\hbar^2} Z = -\frac{2mE_z}{\hbar^2} Z \quad (6)$$

ここで、 E_r および ℓ は変数分離の際に導入した定数である。 $R(r)$ についての微分方程式（(4)式）の解は、第1種ベッセル関数 J_ℓ および第2種ベッセル関数 Y_ℓ となることが知られている。第2種ベッセル関数は $r=0$ で発散するため、第1種ベッセル関数だけが解として許される。

$$R(r) = J_\ell(ar) \quad (7)$$

ここで $a = \sqrt{2mE_r}/\hbar$ である。 $J_\ell(r)$ のいくつかの例を図4に示す。次数 ℓ により中央にゼロ点をもつのが特徴である。

$\Phi(\phi)$ についての微分方程式（(5)式）の解は以下のようになる。

$$\Phi(\phi) = \Phi_0 \exp(\pm 2\pi i \ell \phi) \quad (8)$$

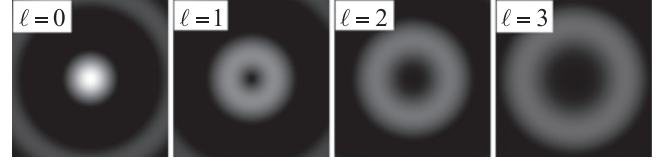


図4 動径分布を表す関数 $R(r)$ の例。

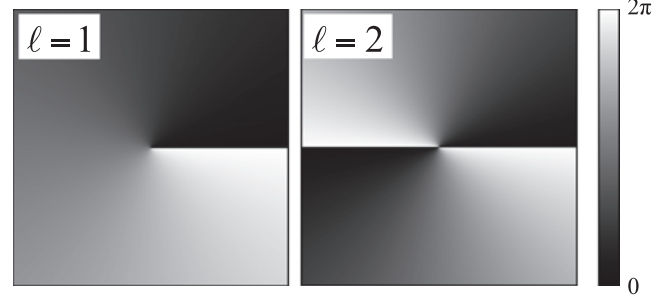


図5 方位角依存性を表す関数 $\Phi(\phi)$ の例。

$\Phi(\phi)$ の周期境界条件、つまり z 軸のまわりを一周してもとの位置に戻った際に $\Phi(\phi)$ は同じ値とならなければならない ($\Phi(\phi) = \Phi(\phi + 2\pi)$) ことから、 ℓ は整数でなければならない。この ℓ は上述のトポロジカル数である。 $\Phi(\phi)$ は方位角方向の位相変化を担っており、 Ψ がらせん波となるための最も重要な成分である。 $\ell=1$ および $\ell=2$ の場合の解を図5に示す。

$Z(z)$ についての微分方程式（式(6)）の解は以下のようになる。

$$Z(z) = Z_0 \exp(\pm 2\pi i k z) \quad (9)$$

ここで、 $k = \sqrt{2mE_z}/\hbar$ である。 $Z(z)$ は z 方向の位相変化を担っており、 Ψ が z 方向に波数 k で伝播する進行波であることを表している。

$\Phi(\phi)$ と $Z(z)$ の積は、

$$\Phi(\phi) Z(z) = \Phi_0 Z_0 \exp\{2\pi i(\ell\phi + kz)\} \quad (10)$$

となる。等位相面は、この関数の位相すなわち $2\pi(\ell\phi + kz)$ が一定の面となる。 $\ell \neq 0$ の時、 $2\pi(\ell\phi + kz) = \text{一定}$ を満たす ϕ と z の集合は、らせん状の曲面となる。

4. 電子らせん波の生成および伝播

4.1 フォーク型回折格子をもちいた電子らせん波の生成

電子らせん波を生成するためにもっとも多くもちいられているマスクは、フォーク型回折格子である。図6はフォーク型回折格子によるらせん波生成の原理を示す。波長の等しい2つの平面波1および2を考える。図6(a)に示すように、平面波1は左側から右側に伝播し（水色の波面）、平面波2はそれとはわずかに傾いて伝播している（黒の波面）。これらがスクリーン状で干渉すると、図6(b)のような等間隔の干渉模様、すなわちホログラムが形成される。まず、このホログラムをフィルム等で記録する。次にスクリーンの代わりに記録したホログラムを置き、図6(c)のように同じ波長を

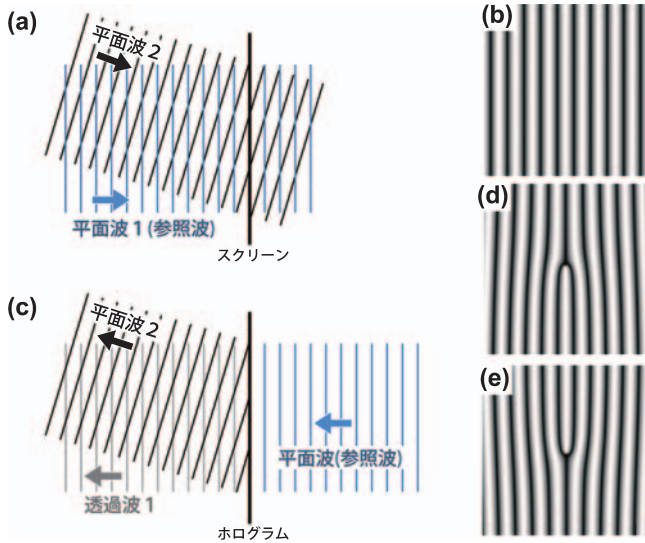


図6 ホログラフィーの原理をもちいたフォーク型回折格子の作製 (a) およびらせん波の生成 (c). (b) 通常の回折格子. (d) $l=1$ のフォーク型回折格子. (e) $l=-1$ のフォーク型回折格子.

もつ平面波を右側から照射する. ホログラフィーの原理にしたがえば, 入射平面波はさきほどと逆過程をたどり, 平面波2と逆向きに伝播する平面波が生成される. 次に, さきほどの平面波2をらせん波に置き換える. らせん波は, 円筒座標系で方位角依存する項 $\exp(2\pi i l \phi)$ で与えることができる. 図6(d)および6(e)はそれぞれ $l=1$ および $l=-1$ として計算したホログラムである. これらのホログラムをスクリーン位置に設置し, 図6(c)のように右側から平面波を入射すると, 平面波2の方向にらせん波が生成することになる. 平面波どうしの干渉縞と異なり, らせん波との干渉縞では中央の1本の縞が刃状転位のように途中で2本に分岐している. またその分岐の向きは符号により反転する.

回折格子の作製は2通りの方法で行った. ひとつは厚さ1ミクロン程度のPt箔を利用する方法で, もうひとつはSiN薄膜にPtPdを蒸着した膜を利用する方法である. 後者では, まず, 厚さ200nmのSi₃N₄膜の両面に, 厚さ100nmのPtPd膜をマグネトロンスパッタ装置で蒸着した. FIB装置(日立ハイテック製, FB-2100)により金属薄膜を貫通するサブミクロンオーダーの孔を切削することができる. あらかじめ計算機ホログラムで設計しておいた画像をもちいて電子線が通過するスリット部分をFIB装置で切削し, 回折格子を作製した. フォーク型回折格子のスリット間隔, スリット幅および全体の直径は, 生成する回折らせん波の回折角, 消滅則およびビーム径(リング径)に影響する. 材料の強度や加工精度も考慮して, スリット幅を0.3μm, スリット間隔を0.5μm, 全体の直径を5μmとした. 今回ももちいたPt箔およびPtPd膜に対する加速電圧200kVの電子線の透過率はおおよそ1%であり, この厚さのPtPd膜でほとんどの電子は遮断されることが確認できた. 実際, 後述するように, 実験で観察された伝播の様子は, 2値化マスクを仮定して得たシミュレ

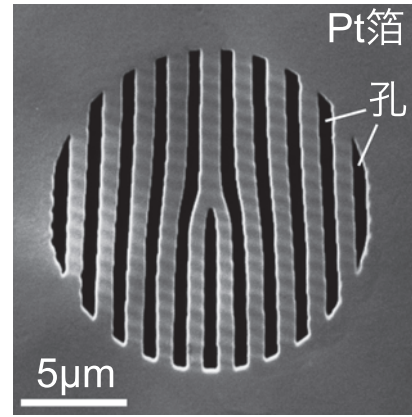


図7 CL絞りに位置に導入したフォーク型回折格子のSIM像.

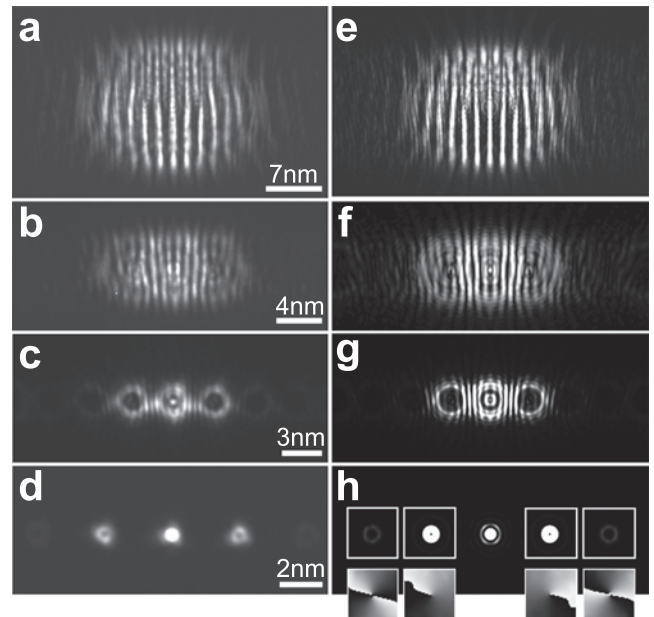


図8 図7のフォーク型回折格子によるナノ電子らせん波の生成. 照射レンズを変化させて試料面で焦点を結ぶまでの強度の変化. (a) から (d) の順に収束角が増大し, (d) では試料面でクロスオーバーを結んでいる. (e) から (h) は, フレネル伝播を仮定したシミュレーション.

シオンと極めて良い一致を示した.

作製したマスクを, 電界放出型電子銃を搭載した透過電子顕微鏡(日本電子製JEM-2010F)の試料位置および収束レンズ絞りに位置に導入した. 試料位置に導入した場合, 回折モードで結像系レンズのフォーカス条件を変えながら, スクリーン上に形成される回折図形を観察した. 回折角がμradオーダーであるため, 高分散回折モードをもちいた. 収束レンズ(CL)絞りに位置に導入した場合, 照射系レンズのフォーカス条件を変えながら, 試料位置に形成される波動場の強度分布を観察した. 加速電圧は120kVまたは200kVとした. 強度分布の記録にはCCDカメラをもちいた.

図7はCL絞りに位置に導入したフォーク型回折格子のSIM像である. ここで暗い部分は電子が通過する孔で, その周り

は電子線を遮蔽する Pt 箔である。回折格子全体の直径は約 $15\ \mu\text{m}$ で、スリット間隔は約 $2\ \mu\text{m}$ である。刃状転位のパーガスベクトルの大きさは 1 である。図 8 (a) ~ 8 (d) は CL の励磁を変化させた際の試料位置でのビーム強度分布である。隣り合う回折格子を通過した電子波どうしが干渉し、図 8 (d) で離散的な回折波を形成する様子がみられる。図 8 (d) にみられる回折波はリング状の強度分布を示しており、らせん波であることがわかる。本実験では、1 次回折波として直径約 $1\ \text{nm}$ の電子らせん波が得られた。図 8 (e) ~ 8 (h) は、フレネル伝播理論にもとづき計算したシミュレーションである。計算した強度分布は実験で観察された分布とよい一致を示している。図 8 (h) の下側に示すように計算した位相分布にはリング状の回折ピークは暗点のまわりを 1 周する間に位相が 2π の整数倍だけ変化しており、らせん波であることが確認できる。

4.2 スパイラルゾーンプレートをもちいた電子らせん波の生成²⁰⁾

らせん波を生成するもうひとつのマスクは、スパイラルゾーンプレートである。図 9 はゾーンプレートによりらせん波が生成される原理を示す。左側から伝播する平面波および点光源 P から放たれる球面波がある。これらがスクリーン上で干渉すると、図 9 (b) のような干渉模様をつくる。これが点光源によるホログラムである。回折格子の場合と同様に、まず、この干渉模様をホログラムとしてフィルム等で記録する。次に、スクリーンの代わりにホログラムを設置し、図 9 (c) のように先ほどと同じ波長をもつ平面波を右側から照射する。ホログラフィーの原理にしたがえば、照射した波はさきほどと逆過程をたどり、点光源 P の位置に収束し、焦点をむすぶ。次に、さきほどの点光源から放たれる球面波をらせん状の波面に置き換える。球面波は、円筒座標系で以下の式で表される。

$$\Psi_{sw}(r, \phi, z) = R(r) \frac{\exp\{2\pi i k \sqrt{r^2 + (z - z_1)^2}\}}{\sqrt{r^2 + (z - z_1)^2}}$$

ここで、 $R(r)$ は動径座標にのみ依存する関数である。 z 軸まわりの方位角依存性をもつ位相因子 $\exp\{2\pi i l \phi\}$ を掛けることにより、球面波の波面はらせん状になる。

$$\Psi_{swl}(r, \phi, z) = \Psi_{sw}(r, \phi, z) \exp\{2\pi i l \phi\}$$

図 9 (d) および 9 (e) は平面波と $l = 1$ および $l = 10$ の球面らせん波の干渉模様である。渦巻き状の干渉縞が形成されることがわかる。各干渉模様は、それぞれ 1 回および 10 回回転対称性をもっていることがわかる。一般にトポロジカル数 l のらせん波を生成するスパイラルゾーンプレートは l 回回転対称性をもつ。

図 10 (a) および 10 (b) は、われわれが作製したそれぞれトポロジカル数が 1 および 10 のスパイラルゾーンプレートの SIM 像である。フォーク型回折格子と同様に、厚さ $50\ \text{nm}$ の Si_3N_4 膜の裏表両面に約 $100\ \text{nm}$ の PtPd 層をマグネトロン

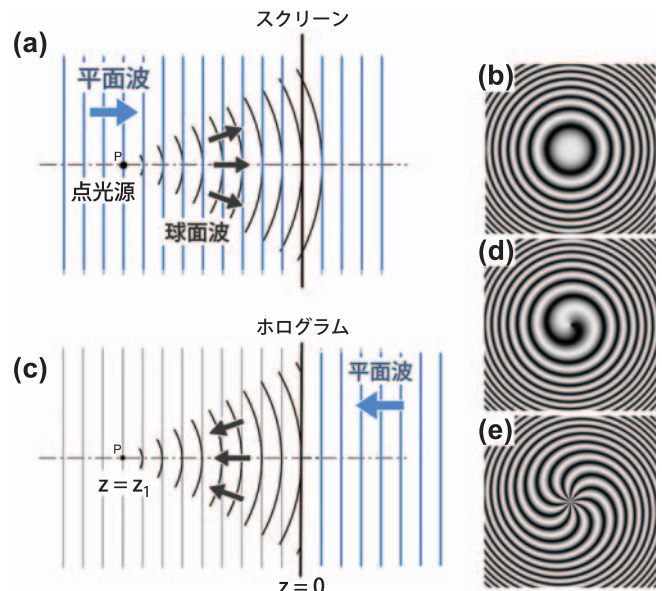


図 9 ホログラフィーの原理にもとづくスパイラルゾーンプレートの作製 (a) およびらせん波の生成 (c). (b) 通常のフレネルゾーンプレート. (d) $l = 1$ のスパイラルゾーンプレート. (e) $l = 10$ のスパイラルゾーンプレート.

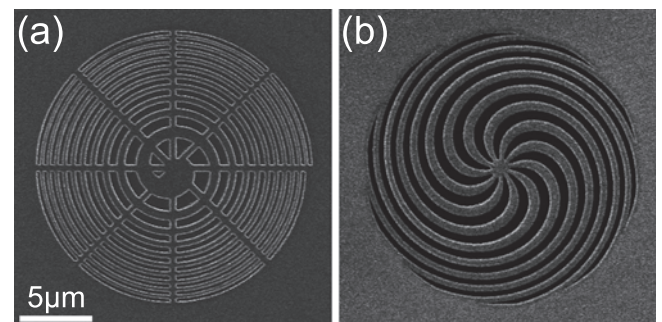


図 10 $l = 1$ (a) および $l = 10$ (b) のスパイラルゾーンプレートの SIM 像.

スパッタ法で蒸着し、FIB 装置をもちいて微細加工を行った。スパイラルゾーンのパターンは、 $200\ \text{keV}$ ($\lambda = 2.5\ \text{pm}$) の電子線に対して 1 次の焦点距離 z_1 が $2\ \text{m}$ 、そのトポロジカル数が $l = 10$ となるようにデザインした。マスク全体の直径は $20\ \mu\text{m}$ で 6 つのフレネル帯からなる。

電子らせん波の生成には、電界放出型電子銃を搭載した透過電子顕微鏡 (日本電子製 JEM-2100F) を加速電圧 $200\ \text{kV}$ でもちいた。図 10 (b) に示した $l = 10$ のスパイラルゾーンプレートを収束レンズ絞り位置に導入し、照射系レンズのフォーカス条件を変えながら、試料面上に形成される波動場の強度分布を観察した。電子線の収束角は、フォーカス変化を通じて約 $10\ \text{mrad}$ であった。

収束レンズの励磁条件を変化させることにより、図 11 (a) ~ 11 (k) に示すようなリング状の強度分布がみられた。図 11 (a) は、0 次波が焦点を結ぶ条件での強度分布である。図 11 (b) および 11 (c) は 10 個のピークからなるリングを示して

おり、それぞれトポロジカル数が $l = 10$ および $l = -10$ の 1 次波および -1 次波であることがわかる。図 11 (d) および 11 (e) は 30 個のピークからなるリングを示しており、それぞれ $l = 30$ および $l = -30$ をもつ 3 次波および -3 次波であることがわかる。本研究では、 $l = 90$ および $l = -90$ をもつ

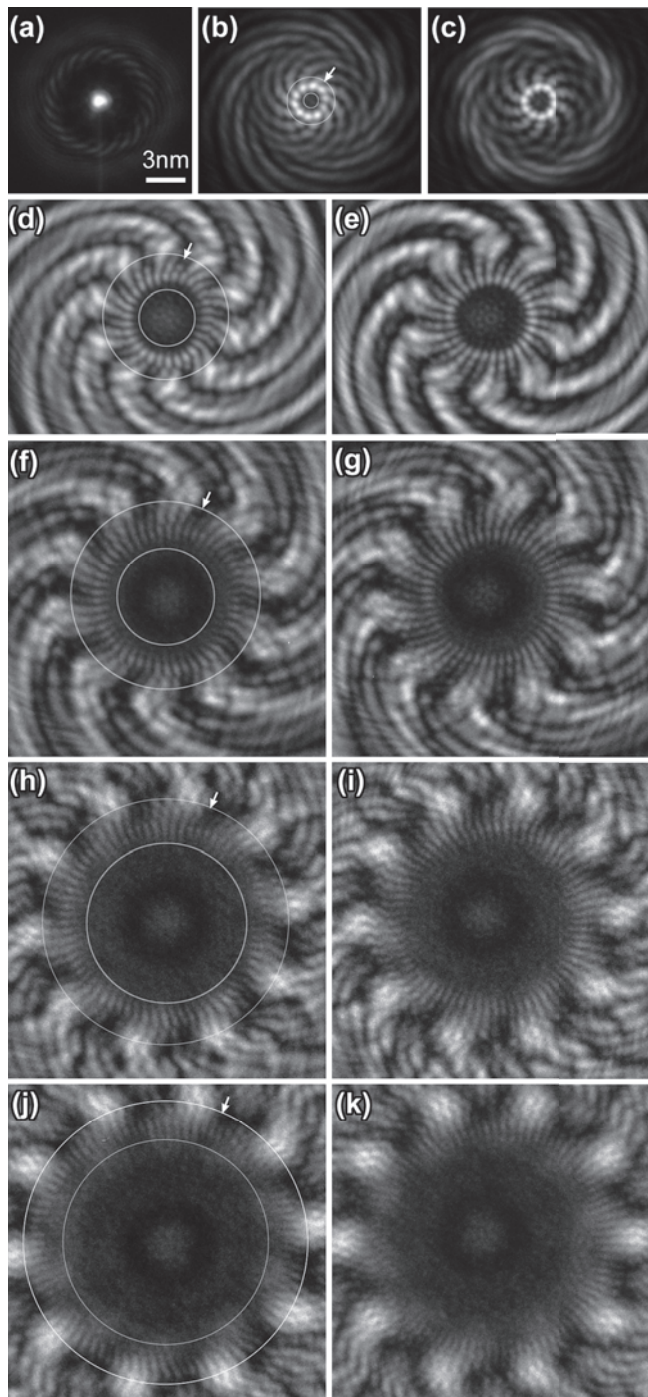


図 11 スパイラルゾーンプレートをもちいて生成した収束らせん波。白い 2 重円で囲まれた円環部分にリング状に配列した輝点がみられるが、それらがらせん波である。輝点の数はトポロジカル数を表す。(a) $l = 0$, (b) $l = 10$, (c) $l = -10$, (d) $l = 30$, (e) $l = -30$, (f) $l = 50$, (g) $l = -50$, (h) $l = 70$, (i) $l = -70$, (j) $l = 90$, (k) $l = -90$.

9 次波 (図 11 (j)) および -9 次波 (図 11 (k)) まで観察することができた。

回折次数がゼロおよび負のらせん波について触れておく。ゾーンプレートに平面波を入射するとともに設計時に置いた焦点 P (図 9 (a)) への収束球面波 (内向波) だけでなく、ゾーンプレートを透過する平面波およびゾーンプレートに対して P と反対の位置にある点を焦点とする発散球面波 (外向波) も強め合いの干渉により生成される。これらはレンズにより収束され、焦点を結ぶ。2 値化マスクであるため、フォーク型回折格子の場合と同様に、高次波も生成される。本研究では ± 9 次の球面波まで生成されることが確認できたのはそのためである。

図 12 は、図 11 (a)~11 (k) で観察されたリングの直径の回折次数依存性を示している。軌道角運動量とリングの直径が比例関係であることがわかる。このことは、フォーク型回折格子で観察された結果と一致している³⁾。収束角の増大にともないリングの直径は減少する。これは、らせん波でない通常の収束電子ビームと同様のふるまいである。今回の実験では、収束半角を 13 mrad とした時、各回折波リングの直径が最小となり、ゼロ次波では 0.2 nm、1 次波では 1 nm となった。この収束レンズ条件では、隣接する回折らせん波の焦点はほぼ等間隔で配列し、その距離は約 200 nm となった。さらに収束角を増大させると、ビーム径は増大するのが観察された。これは球面収差の影響であると考えられる。収差補正子をもちいて照射系の収差を抑えることにより、さらにリング径が縮小することが期待される。ただし、リング径の最小値は電子の軌道角運動量および波長によって制限されることが報告されている^{21,22)}。

スパイラルゾーンプレートに平面波を入射することにより、伝播方向の異なる位置に焦点を結ぶらせん波が生成される。今回の実験では、隣り合う焦点間の距離はおよそ 200 nm であった。走査透過電子顕微鏡 (STEM)²³⁾ や電子エネルギー損失分光 (EELS) にもちいる場合、特定の軌道角運動量をもつらせん波のみからなる電子線を生成する必要がある。このような特定の軌道各運動量をもつらせん波の選択は、そのらせん波が焦点を結ぶ位置にピンホールを挿入することにより行うことができる。この場合、STEM におけるプローブの走査は、試料ステージの走査により行うことができる²⁴⁾。

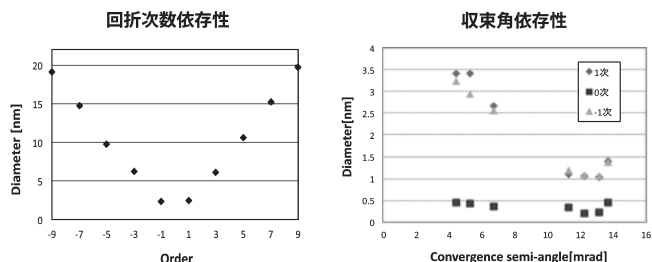


図 12 (a) 収束電子らせん波のビームウェスト直径の回折次数依存性。(b) 0 次、1 次および -1 次波のビームウェスト直径の収束角依存性。

5. 2つの電子らせん波の干渉²⁵⁾

今回さまざまな軌道角運動量をもつらせん波が生成されたが、それらは互いに干渉するであろうか？われわれはヤングの2重スリットと同等のレイアウトで実験的検証を行った。干渉は、波であることを示す最も顕著な現象であるが、波だからといって必ず干渉するとは限らない。たとえば、2重スリットのそれぞれに互いに偏光方向が直交する偏光板を設置すると干渉縞が消失する^{26,27)}。量子力学によれば、2つのスリットのどちらを通過したか判別できた場合、干渉縞は生じない。互いに直交する偏光板を設置することは、光子がどちらのスリットを通過したか判別できる「印」を付けることに相当していると考えられる。次に、2重スリットとスクリーンとの間に、偏光方向が45°方向の偏光板を挿入すると干渉縞が再び出現する²⁷⁾。これは、45°偏光板により2重スリットで付けられた「印」が消去されるためと解釈できる。この種の実験は which-way 実験として知られるもので、これまでさまざまな工夫を凝らした実験がなされ、興味深い議論がなされている²⁷⁻³²⁾。われわれが行った実験は、電子への軌道角運動量の「印付け」が干渉に影響を及ぼすか？ということを確認する実験でもある。

図13は、今回の実験のレイアウトを模式的に示したものである。ヤングの2重スリットの各スリット位置に回折格子を設置したマスクを作成し、その膜に電子線を照射した。回折格子を通過した電子は図8のように回折面でらせん波を形成する。2つの回折格子のスリット間隔およびスリット方向は等しく、両回折格子からの回折波はスクリーン上の同じ位置でリング状ピークを形成するため、それらは重なり合う。この重なり合った回折リング内に生じる干渉模様を観察した。図14(a)、14(b)および14(c)は、今回もちいた3種類の2重回折格子マスクである。バーガースベクトル $b = +1, -1$ および0のフォーク型回折格子を異なる組み合わせで配置した。作製した回折格子を透過型電子顕微鏡の試料位

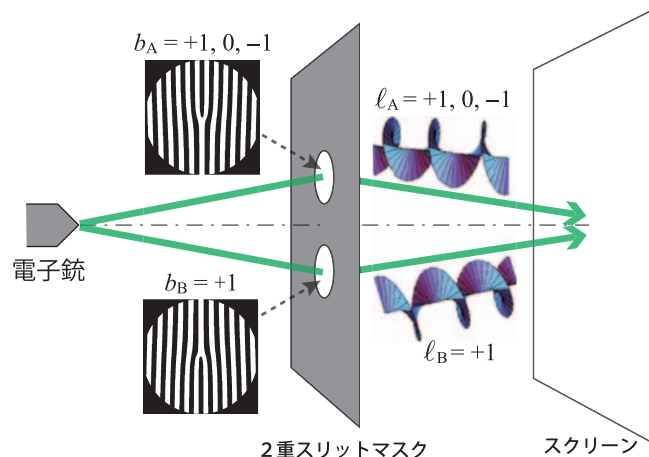


図13 本実験のレイアウト。ヤングの2重スリットの各スリットの代わりに回折格子を設置した。

置に導入し、カメラ長80mで回折図形を観察した。各マスクからの回折波どうしが重なり合う回折面で、干渉模様を観察した。

図15(a)、15(b)および15(c)は、2つのらせん波のトポロジカル数 (l_A, l_B) がそれぞれ $(+1, +1)$, $(+1, -1)$ および $(+1, 0)$ とした場合の実験結果である。2つのらせん波の軌道角運動量が等しい場合、ヤングの実験と同様に干渉を生じることが期待され、実験でもその期待通りに干渉縞がみられた。軌道角運動量が異なる場合、すなわち軌道角運動量の「印付け」がなされた場合でも、干渉縞が現れた。この結果は、スクリーン上で検出する（つまり位置の測定を行う）ことにより、軌道角運動量が不確定になってしまうため、と解釈される。つまり、軌道角運動量（正確には軌道角運動量の z 成分 L_z ）と

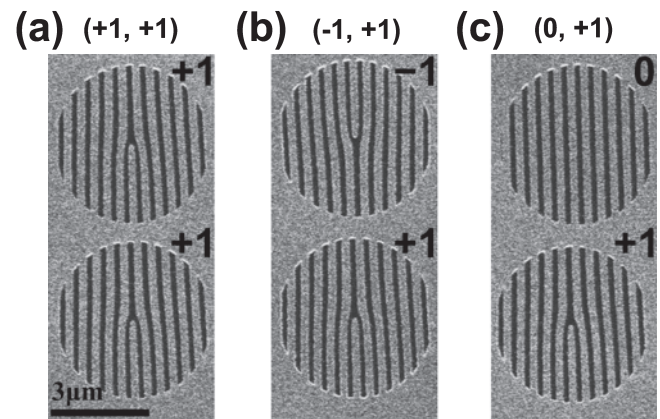


図14 実験でもちいた3つの2重回折格子。各図の上のカッコ内の数字は、回折格子のバーガースベクトルの組み合わせを表す。

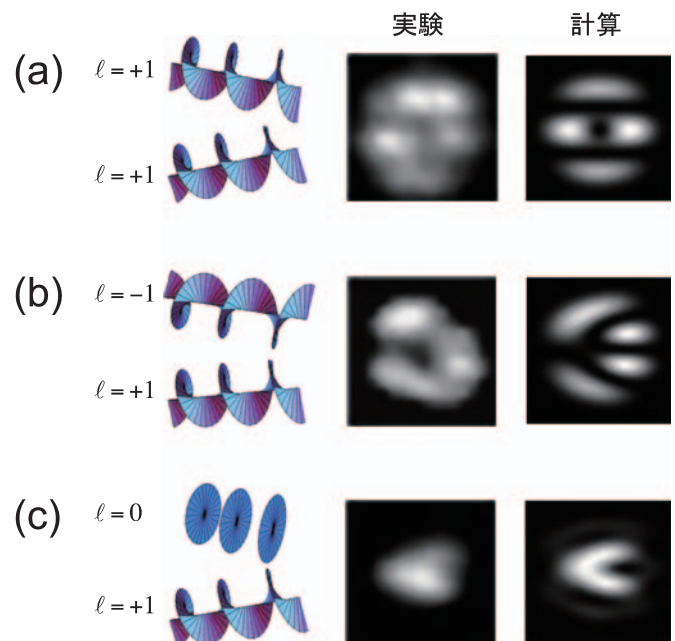


図15 2つのらせん波を重ね合わせた際に観察された干渉模様。らせん波どうしが波として干渉しあうと仮定した計算とよい一致を示している。

位置 (z 方向に垂直な座標 x または y) の不確定性関係に起因していると考えられる。量子力学では、同時計測可能性と演算子の非可換性は密接に関係している。実際、 L_z と x (または y) は非可換 ($[L_z, x] \neq 0$ または $[L_z, y] \neq 0$) であり、同時計測不可能な物理量であることがわかる。

今回の干渉実験により、電子ビームが担う軌道角運動量という物理量の量子力学的な性質を明らかにすることができた。軌道角運動量はスピンと異なり、位置 (x および y) と同時計測不可能な (非可換な) 物理量であることが確認できた。実験のレイアウトにさらなる工夫を加えることにより、遅延選択、量子消去^{27~32)} など量子情報分野の興味深い問題を明らかにするための実験が可能になるであろう。2つの電子らせん波による干渉縞の模様は、2つの電子の軌道角運動量の差を反映して変化することが判明した。この結果は任意の電子の軌道角運動量が計測できることを意味する。この性質を利用することにより試料と相互作用した電子の軌道角運動量をマッピングする新しい電子顕微鏡法が行えるであろう。

6. まとめ

本稿では、電子らせん波の生成、伝播過程および干渉性について述べた。フォーク型回折格子およびスパイラルゾーンプレート of いずれの方法も、マスクからの波の回折波としてらせん波を生成する。通常の電子波と同様に磁場レンズでビームを収束することができ、収差補正のない電子顕微鏡でもビーム径 1 nm 程度まで絞ることができる。マスクのデザインの改良や収差補正レンズの最適化を行うことにより原子レベルのビーム径を実現することができるであろう。生成したらせん波の軌道角運動量の計測については、もうひとつ別のフォーク型回折格子をもちいて行うことが可能であり、今回紹介したスパイラルゾーンプレートの1次の焦点位置に生成した電子波の軌道角運動量が $10 \hbar$ であることを確かめている³³⁾。またヤングの2重スリットと同じレイアウトで2つの電子らせん波が軌道角運動量によらず干渉することを確認した。この結果は、軌道角運動量と位置の不確定性関係を実験的に示したものと見える。

本研究を行うにあたり、名古屋大学エトピア科学研究所の吉田健太氏、名古屋大学結晶材料工学専攻の武藤道洋氏、平川和馬氏にはおもに実験の面で、名古屋大学情報科学研究科の谷村省吾先生には干渉実験の解釈についてご助言をいただきました。また田中信夫先生には研究全般にわたりご支援いただきました。この場をお借りして感謝の意を表します。本研究の一部は、科研費基盤研究 (A) (No. 23241036) および三菱財団研究助成により行われました。

文 献

- 1) Uchida, M. and Tonomura, A.: *Nature*, **464**, 737–739 (2010)
- 2) Verbeeck, J., Tian, H. and Schattschneider, P.: *Nature*, **467**, 301–304

- (2010)
- 3) McMorran, B.J., Agrawal, A., Anderson I.M., Herzing, A.A., Lezec, H.J., McClelland, J.J. and Unguris, J.: *Science*, **331**, 192–195 (2011)
- 4) Allen, L., Barnett, S.M. and Padgett, M.J. (Eds.): *Optical Angular Momentum*, Taylor & Francis, London (2003)
- 5) Franke-Arnold, S., Allen, L. and Padgett, M.J.: *Laser Photon. Rev.*, **2**, 299–313 (2008)
- 6) Allen, L., Beijersbergen, M.W., Spreeuw, R.J.C. and Woerdman, J.P.: *Phys. Rev. A*, **45**, 8185–8189 (1992)
- 7) Simpson, N.B., Dholakia, K., Allen, L. and Padgett, M.J.: *Opt. Lett.*, **22**, 52–54 (1997)
- 8) Friese, M.E.J., Nieminen, T.A., Heckenberg, N.R. and H. Rubinsztein-Dunlop: *Nature*, **394**, 348–350 (1998)
- 9) Leach, J., Padgett, M.J., Barnett, S.M., Franke-Arnold, S. and Courtial, J.: *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 257901 (2002)
- 10) Mair, A., Vaziri, A., Weihs, G. and Zeilinger, A.: *Nature*, **412**, 313–316 (2001)
- 11) Harke, B., Keller, J., Ullal, C.K., Westphal, V., Schönle, A. and Hell, S.W.: *Optics Express*, **16**, 4154–4162 (2008)
- 12) Toyoda, K., Miyamoto, K., Aoki, N., Morita, R. and Omatsu, T.: *Nano Letters*, **12**, 3645–3649 (2012)
- 13) Bliokh, K.Y., Dennis, M.R. and Nori, F.: *Phys. Rev. Lett.*, **107**, 174802 (2011)
- 14) Lloyd, S., Babiker, M. and Yuan, J.: *Phys. Rev. Lett.*, **108**, 074802 (2012)
- 15) Löffler, S. and Schattschneider, P.: *Acta Cryst. A*, **68**, 443–447 (2012)
- 16) 名古屋市科学館に展示されている。
- 17) 例えば, Schattschneider, P. and Verbeeck, J.: *Ultramicroscopy*, **111**, 1461–1468 (2011)
- 20) Saitoh, K., Hasegawa, Y., Tanaka, N. and Uchida, M.: *J. Electron Microsc.*, **61**, 171–177 (2012)
- 21) Idrobo, J.C. and Pennycook, S.J.: *J. Electron Microsc.*, **60**, 295–300 (2011)
- 22) Verbeeck, J., Schattschneider, P., Lazar, S., Stoger-Pollach, M., Löffler, S., Steiger-Thirsfeld, A. and Van Tendeloo, G.: *Appl. Phys. Lett.*, **99**, 203109 (2011)
- 23) Verbeeck, J., Tian, H. and Beche, A.: *Ultramicroscopy*, **113**, 83–87 (2011)
- 24) Hashimoto, A., Shimojo, M., Mitsushishi, K. and Takeguchi, M.: *Microsc. Microanal.* **16**, 233–238 (2010)
- 25) Hasegawa, Y., Saitoh, K., Tanaka, N., Tanimura, S. and Uchida, M.: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **82**, 033002 (2013)
- 26) Fresnel, A. and Arago, F.: *Ann. Chim. Phys. X*, Series 2, 288–305 (1819)
- 27) 谷村省吾: 日経サイエンス, 2012年3月号 32–43, 2012年4月号 44–45 (2012)
- 28) Scully, M.O. and Drühl, K.: *Phys. Rev. A*, **25**, 2208–2213 (1982)
- 29) Dürr, S., Nonn, T. and Rempe, G.: *Nature*, **395**, 33–37 (1998)
- 30) Kim, Y.-H., Yu, R., Kulik, S.P., Shih, Y. and Scully, M.O.: *Phys. Rev. Lett.*, **84**, 1–5 (2000)
- 31) Jacques, V., Wu, E., Grosshans, F., Treussart, F., Grangier, P., Aspect, A., Roch, J.-F.: *Science*, **315**, 966–968, (2007)
- 32) Frabboni, S., Gazzadi, G.C. and Pozzi, G.: *Appl. Phys. Lett.*, **97**, 263101 (2010)
- 33) Saitoh, K., et al. submitted