レーザー光電子分光

辛 埴

東大・物性研 Laser-Photoemission Shik Shin ISSP, University of Tokyo

We will introduce recent Laser-Photoemission. The combination between laser and photoemission makes fruitful results using the monochromatism, short pulse and high intensity of laser lights. Ultra high resolution is powerful for the basic study of solid state properties. Time-resolved Photoemission is very powerful for the relaxation process of excited electrons, photo-induced phenomina, and so on.

1. はじめに

レーザーは、短パルス性、単色性、コヒーレンス など優れた特性を持った夢の光源であることは、発 見から45年たった今でも変わりがない。現代科学 は、このようなレーザーの特性を利用した様々な基 礎科学や応用科学を生み出してきた。レーザー科学 の進歩は著しく、可視光から、より短波長領域へ開 発が進み、軟X線領域の物性研究にも耐えうるよう な良質なレーザー光が近年になって得られるように なってきた。その結果、シンクロトロン放射光など の既存の光源では全く不可能であった実験が可能に なりつつある。レーザーの持つ短パルス性、単色性、



コヒーレンスを生かした新しい光科学の研究分野が次世代に形成されることを予感させ るものである。一方、光科学の中で、光電子分光はエネルギー、運動量、スピンと固体 の電子状態を解明する完全実験であることが知られており、物性研究の手段として本質 的に最も優れている。しかし、これまでは、通常の光物性実験と比較すると分解能や精 度などが遙かに見劣りするものであった。レーザーを用いた新しい軟X線光源が誕生し、 光電子分光の分解能や精度が限りなく上れば、固体の電子状態を解明する決め手となる はずである。光電子分光の最も優れた特性は、運動量を知ることができることである。 運動量は、2次元物質の場合、図1から得られるように、光電子の放出角度θとすると、

 $\hbar k_{//} = \hbar K_{//} = \sqrt{2mE_{K}sin\theta} = \sqrt{2m}(\hbar\omega - \phi - E_{B})sin\theta$ 

のように求めることができる。運動量は他の 実験方法では、ほとんど知ることができない ので、光電子分光の独壇場と行っても良い。 図2は、レーザーの優れた特性と、それを生 かした光電子分光の組み合わせを書いた物で ある。本講演では、このうち、高分解能光電 子分光と、時間分解光電子分光について述べ るつもりである。



2. 高分解能光電子分光

これまで、レーザーを用いた光電子分光は存在していたが、パルス性が強すぎるために スペースチャージ効果によりスペクトルが著しくゆがんでしまい、意味のある実験を行 うことがほとんどできなかった。この最初のブレークスルーは、2005年に我々によ って開発されたKBBF結晶を用いた準CWレーザー光電子分光の出現によってもたら された(Kiss, et al., PRL(2005))。励起エネルギーの7 e Vは、仕事関数より十分、 高いエネルギーであった上に、80MHzの高繰り返しであったために、スペースチャ ージの影響がほとんどなかったのである。このレーザー光電子は分解能360µ e Vを 達成し、光電子分光の分野だけでなく、それを用いた物性分野に衝撃を与えた。このエ ネルギー分解能は、温度に換算すると、1K くらいに対応しているので、いわゆる凝縮 系の物性研究の議論ができることを意味している。図3は、高温超伝導体 Bi2212の角度

分解光電子分光の例である。 MDCにより、物質中の電子の 散乱確率(τ)が直接得られ ることができる。また、バン ド分散から、電子の速度(v) を求めることができる。従っ て、通常の輸送現象で求めら れる電気伝導などの物理量と 直接比較できる。

$$\sigma = nev = \frac{ne^2\tau}{m}$$

このうちキャリアー数である nは、フェルミ面の大きさか



ら求めることができる。また図3では、バンド分散が70meV付近で、直線からずれてキンクが生じる様子が観測されているが、固体内の、ボゾン(フォノンやマグノンなど) と電子がカップルしている様子が分かる。

(2) 時間分解光電子による緩和現象、化学反応の研究

一方、光電子分光は、エネルギーや運動量だ けでなく、ポンププローブ分光の手法を用 いると、非平衡電子の時間依存性の研究も 可能である。これにより、ごく最近、光誘 起相転移物質や半導体、酸化物表面上の吸 着分子の本格的な時間分解光電子分光が可 能になって来た。光誘起相転移物質につい ては、他のレーザー分光実験でよく研究さ れている酸化バナジウム、マンガン化合物、 有機ET系、ニッケル錯体などが考えられ る。これらの物質は、モット転移、パイエ ルス転移、スピンパイエルス転移などによ り金属絶縁体相転移、CDW、SDW転移 を起こすことが知られており、固体中の電



子相関、電子格子相互作用、電子スピン相互作用について、重要な情報が得られる。このような時間分解光電子分光は電子の緩和現象や金属絶縁体相転移の基底状態の物理を 明らかにするだけでなく、励起状態という新しい物質の創製とその観測を行うことを可 能にするものである。

物性研では、再生増幅 Ti サファイアレーザー(170 fs, 250 kHz) を用いた 1.5 eV ポ ンプ、5.9 eV プローブの角度分解光電子分光装置(図4)、及び、ハイパワーTi サフ ァイアレーザー(1 kHz)とガスセルを用いた 60eV の高調波軟 X 線プローブ光による角 度分解光電子分光装置(図 5)の2種類ある。ともに、静電半球型アナライザーを採用

することで、従来の飛行時間 型アナライザーを用いた時間 分解光電子分光装置に比して、 高いエネルギーと角度分解能 で励起電子状態を測定できる 特長をもつ。本講演では、グ ラファイト、高温超伝導体、 CDW 物質 TaS2の時間分解光電



子分光の結果を紹介する。

図6は、励起電子の緩和過程を表したものである。これまで、励起電子の緩和過程は、

理論的に研究されたことは ほとんどなされたことはな い。経験的に、金属に対し て、Two temperature medel で解析されることが多いよ うである。図6(a)で表され るように、まず、ポンプ光 により、電子温度のみが上 昇する。その時、格子は追 随子格子相互作用により、 格子温度も上昇を初め、最 後に熱平衡に達する。我々 の研究によると、グラファ



イトの場合は、ディラックコーン状のバンド構造のために、格子の温度上昇がポンプ光の励起と、ほとんど同時に起きていることが分かっている(図6(b))。

一方、内殻の光電子分光は、より高い励起エネルギーを
必要とし、軟X線領域の新しい光源が必要である。内殻を
使うメリットは、電荷量を直接知ることができる事である。例えば、CDWを起こしている物質にとって、電荷密度波により生じる電荷量を各サイト毎に直接知ることは
重要である。図7の下図は、
60eVの軟X線を用いたTaS2の
4f内殻の時間分解光電子分光である。CDWに伴う4f内



殻の分裂(化学シフト)が観測されているが、分裂巾が時間変化しているのが分かる。 図7の上図は分裂巾の時間変化を表す物であるが、CDWに関しているフォノンの振動数が 観測されている事が分かる。光誘起相転移に伴い、フォノンが放出されることは価電子 帯の光電子分光でも観測されており、それとコンシステントである。