放射光とレーザーの組み合わせによる時間分解光電子分光ビームライン

東純平,高橋和敏,鎌田雅夫 佐賀大学シンクロトロン光応用研究センター

Beamline for time-resolved photoemission measurement using synchrotron radiation and laser

J. Azuma, K. Takahashi, and M. Kamada

Synchrotron Light Application Center, Saga University

Saga University has constructed a soft X-rays beamline for advanced researches of the photo-excited carrier dynamics on bulk, surface and interface of solid state materials. There are two endstations/branches; the one (VLS station) is designed for use of the synchrotron radiation (SR) from an undulator, a type of insertion devices, and the other (PGM station) was constructed to use radiation from a bending magnet. Laser can also be used in these endstaions and the various combination experiments using SR and laser are possible. In this report, the details of the VLS station are given. The VLS station of BL13 has been constructed for high-resolution angle- and time-resolved photoemission study for solids and surfaces. In order to realize high-resolution in a wide energy rage from VUV to SX region, the monochromator is composed of the grazing incidence mount with two varied line spacing plane gratings (VLSPG). It is found from ray-tracing simulations that resolving power better than 10,000 and photon flux of 10¹⁰-10¹² photons/sec can be obtained. Two high-resolution angle-resolved photoemission spectrometers with gated-detectors, a mode-locked Ti:sapphire laser with a regenerative amplifier, and an automatic wavelength-tunable mode-locked Ti:sapphire laser are installed at the beamline BL13 and available in both VLS and PGM stations. Using these systems, we can perform the time-resolved high-resolution photoemission study for various photo-excited phenomena and surface dynamics, in addition to the conventional high-resolution angle-resolved photoemission study.

1. はじめに

放射光ビームラインを利用した光電子分光 法は,光子エネルギーを自由に選択でき,また 放射光の輝度が高いことにより単色性の高い 光を得られることから,光電子の平均自由行程 が最も短い運動エネルギー領域(~50 eV)で の表面敏感測定,表面垂直方向の波数分解測定, 内殻準位の高分解能測定,内殻共鳴光電子測定 が可能な非常に強力な実験手法である[1,2].こ れらの手法に加えて放射光のパルス性とレー ザーを組み合わせた時間分解光電子分光法の 開発とそれによる光誘起現象の研究も盛んに 行われつつある[3].

従来の実験室光源(He,Xe放電管,X線管)

を用いない光電子分光法として,近年ではレー ザーを光電子放出の為の励起光源とする光電 子分光法も開発されつつある.こちらの手法で は放電管を超える狭帯域を実現したり[4],第 三世代放射光源では不可能なフェムト~ピコ 秒領域での時間分解光電子分光が可能となっ ている[5].

我々のグループでも,佐賀県立九州シンクロ トロン光研究センター内に建設した佐賀大学 専用ビームラインBL13において放射光とレー ザーの組み合わせによる時間分解光電子分光 法あるいはレーザー単体による時間分解光電 子分光法の開発とそれらを用いた研究を行な ってきたので,その結果について紹介する.



図1: 佐賀大学ビームライン BL13 の平面図

2. 実験装置

2.1. ビームライン

図1に佐賀大学ビームラインBL13の平面図 を示す.BL13の大まかな構成であるが,アン ジュレータと呼ばれる挿入光源からの放射光 を利用する図下側の測定ステーション(VLS ステーション)と偏光電磁石から発生する放射 光を利用する図上側の測定ステーション (PGM ステーション)に分けられる.これら の測定ステーションは1つのビームポートか ら遮蔽壁内部で分岐されており,同時利用が可 能となっている.

ここでは主に VLS ステーションについて説 明する このステーションでは前述したように 蓄積リングの直線部に設置された平面型アン ジュレータと呼ばれる挿入光源から放射され る高輝度なアンジュレータ光を利用する.この アンジュレータの磁石列周期長は86mm 周期 数は24 であり ギャップを35 mmから100 mm まで動かす事で 40 eV から 800 eV までのアン ジュレーター光を取り出す事が可能である.ア ンジュレータ光はスリット - スリット長8 m、 切り替え偏角の Monk-Gillieson 型不等間隔平 面回折格子分光器で分光される.設計分解能 E/AEは50~600 eVの領域で最大10000以上, 実用上の分解能は 5000 程度である.分光され た光はエンドステーションの光電子分析槽中 心に再度集光される.測定位置でのビームサイ ズは 130 eV のアンジュレータ光に対する実測 値で 350 µm×140 µm であり, ある程度小さな 試料についても測定が可能である[6].

分析槽には平均軌道半径200 mmの高分解能 角度分解静電半球型電子エネルギー分析器 (MBS 製 A-1)が設置されている.パスエネ ルギー2 eV でのエネルギー分解能は He I_a線を 用いた実測で 1.6 meV である.分析槽にはこの 他に試料を冷却する為の He 冷凍機と試料や光 の位置を確認する為の高倍率 CCD カメラが設 置されている.レーザー光を導入する為の光学 系が分析槽横に構築されており,放射光と全く 同じ位置にレーザースポットを重ねて照射す ることが可能である.

分析槽に接続された試料準備槽にはサンプ ル加熱機構,窒素ため込み式クライオスタット, イオン銃,電子ビーム蒸着源,水晶振動子膜厚 計,低速電子線回折(LEED)測定装置,試料 破断装置が装備されており,ロードロックから 搬送された試料について一通りの表面処理が 可能となっている.

2.2. レーザーシステム

佐賀大学ビームライン BL13 には放射光と組 み合わせてあるいは単独で使用する為のレー ザーシステムが3 セット用意されている.放射 光との組み合わせで使用するレーザーは高繰 り返しの Ti:sapphire 再生増幅器(Coherent 社製 RegA9000) とシード用の Ti:sapphire 発振器 (Coherent 社製 Mira900F) である.Ti:sapphire 再生増幅器は 200 fs 以下のフェムト秒パルス を繰り返し周波数 10~300 kHz で発生できる. パルスエネルギーは中心波長の 800 nm で 2 μJ 以上である.



図2:放射光とレーザーの組み合わせによる時間分解光電子分光システム



図3:放射光とレーザーを組み合わせた時間分解光電子分光タイミングチャート

2.3. 放射光とレーザーの組み合わせによる時 間分解光電子分光システム

図 2 に放射光とレーザーの組み合わせによ る時間分解光電子分光システムの概略を示す。 前述した高倍率 CCD カメラを用いて放射光と レーザー光を空間的に重ねて照射する. Ti:sapphire 再生増幅器の繰り返し 10~300 kHz に対して放射光の周波数は 500 MHz と非常に 高繰り返しであり,放射光は擬似的に CW 光 として取り扱える.放射光によって連続的に放 出される光電子は静電半球型アナライザーで 分光され 最終的にマイクロチャンネルプレー ト(MCP)と蛍光板および CCD カメラで構成 された光電子検出器に到達する.この光電子検 出器には更に MCP のゲートをレーザーに同期 して Open/Close できる機能が追加されており, 特定の時間領域だけの光電子を測定すること が可能となっている.図3にゲートによる時間 分解光電子分光測定のタイミングチャートを 示す.アナライザーコントローラで設定できる ゲート幅の分解能(時間分解能)は最小 20 ns, 測定可能な時間領域は最大 100 μs である[7].

2.4. レーザー時間分解光電子分光システム 図 4 にレーザーによる時間分解光電子分光 システムの実験配置図を示す.光源としては同 じく高繰り返しの Ti:sapphire 再生増幅器 (Coherent 社製 RegA9000)を用いる.波長 810 nmの Ti:sapphire 再生増幅器出力から非線形結 晶 β-Barium Borate (BBO)を用いて 405 nm の 2 倍高調波と 270 nm の 3 倍高調波を取り出し, 基本波または 2 倍高調波をポンプ光,3 倍高調 波を光電子放出を起こすプローブ光として用 いる.光学系そのものはディレイラインを用い た一般的なポンプ-プローブ測定配置であり, 測定可能な時間範囲は現在のところ-100 ps~2 ns である.

この測定システムはレーザー単体でのデー

タ取得が可能であるので,直接的な意味での放 射光とレーザーの組み合わせ実験とは言えな い.しかしながら,同一の試料に対して,放射 光光電子分光測定,放射光とレーザーの組み合 わせによる時間分解光電子分光測定,レーザー 時間分解光電子分光測定を速やかに切り替え て実行可能な点は,実はこのビームラインの最 も大きな特徴の一つである.

レーザーの高調波を用いた時間分解光電子 分光測定では、プローブ光のエネルギーが低く かつほぼ固定である.その為、試料表面をまず 第一にチェックする為に、高エネルギーの光を 用いた光電子分光測定や電子線励起によるオ ージェ電子分光測定などの別の測定が必要と される.またレーザーの高調波によって励起さ





図4:レーザー時間分解光電子分光法システム

れる光電子の運動量すなわち波数が小さい為 に,観測可能な電子状態の波数領域が狭く,ブ リルアンゾーン内のどの領域の電子状態を測 定しているか特定するのが非常に困難である. よって単一の試料同一条件において試料表面 の評価を行い,且つ放射光光電子分光法とレー ザー光電子分光法の両方により電子状態を測 定し比較することが大変重要である.その意味 でこのレーザー時間分解光電子分光システム は単体では成立せず,放射光とレーザーの組み 合わせによる光電子分光システムの一部とし て機能している.



図 5: *n*-InAs(100)における光励起状態の時間分解 光電子分光測定結果

3. 実験結果

最後にこれらの光電子分光システムで得られた測定結果の一例を示す。図5は*n*-InAs(100)のレーザー時間分解光電子分光測定結果である.横軸は波数,縦軸は伝導帯下端から計った電子のエネルギーであり,光電子強度を高さとして三次元表示してある.ポンプ光の入射した時間原点において矢印A,Bで示された伝導帯の高エネルギー側に励起された電子が,時間経過とともに伝導帯下端へ緩和していく様子が,伝導帯の分散と併せて観測されている[8].

4. まとめ

放射光とレーザーの組み合わせによって固体,表面,界面における光励起キャリアダイナ ミクスを探索する為の時間分解光電子分光ビ ームラインの開発を行ってきた.現在,放射光 とレーザーの組み合わせによる時間分解光電 子分光測定とレーザー時間分解光電子分光測 定により数十ナノ秒からマイクロ秒までとフ ェムト秒からナノ秒までの時分割計測が可能 である.

引用文献

[1] S. Hufner, *Photoelectron Spectroscopy*, 2nd ed. (Springer, Berlin, 1996).

[2] S. Hufner, Very High Resolution Photoelectron Spectroscopy, (Springer, Berlin, 2007).

[3] N. Bergeard, M. G. Silly, D. Krizmancic, C. Chauvet, M. Guzzo, J. P. Ricaud, M. Izquierdo, L. Stebel, P. Pittana, R. Sergo, G. Cautero, G. Dufour, F. Rochet, and F. Sirotti, J. Synchrotron Rad. **18**, 245 (2011).

[4] T. Kiss, T. Shimojima, K. Ishizaka, A. Chainani, T. Togashi, T. Kanai, X. Y. Wang, C. T. Chen, S. Watanabe, and S. Shin, Rev. Sci. Instrum. **79**, 023106 (2008).

[5] L. Perfetti, P. A. Loukakos, M. Lisowski, U. Bovensiepen, H. Berger, S. Biermann, P. S. Cornaglia, A. Georges, and M. Wolf, Phys. Rev. Lett. **97**, 067402 (2006).

[6] K. Takahashi, Y. Kondo, J. Azuma, and M. Kamada, J. Electron Spectros. Relat. Phenom. **144-147**, 1093 (2005).

[7] K. Takahashi, J. Azuma, S. Tokudomi, and M. Kamada, AIP Conf. Proc. **879**, 1218 (2007).

[8] J. Azuma, K. Takahashi, and M. Kamada, Phys. Rev. B **81**, 113203 (2010).