

時間分解軟 X 線光電子分光法による表面キャリアダイナミクス研究の 現状と今後の展望

Carrier dynamics on surfaces studied by time-resolved soft x-ray photoelectron spectroscopy: Present status and future prospect

山本達 (東京大学物性研究所)
Susumu Yamamoto (ISSP, University of Tokyo)

エネルギー・環境問題の観点から現在注目を集めている光触媒や太陽電池は、それぞれ光エネルギーを化学エネルギーや電気エネルギーに変換する過程である。これらの過程の効率化には、いかに光励起キャリアを緩和させずにエネルギー変換させるか、すなわち光励起キャリアの動的挙動（ダイナミクス）を理解することが不可欠である。

X 線光電子分光法は物質表面の電子・化学・スピン状態を直接観測することが可能な非常に強力な実験手法である。放射光 X 線は数十ピコ秒の時間幅を持ったパルス光であり、第3世代放射光施設から得られる高輝度放射光により時間分解 X 線光電子分光法が近年可能になってきた[1]。

我々は、東京大学アウトステーション SPring-8 BL07LSU において超短レーザーパルスと高輝度軟 X 線パルスを組み合わせたポンプ・プローブ時間分解軟 X 線光電子分光システム[2,3]を建設した。本システムでは、50 ピコ秒の時間分解能でピコ～ミリ秒の広い時間範囲における物質の電子状態の過渡的变化を追跡することが可能になっている。

本講演では、時間分解軟 X 線光電子分光システムを利用した研究例として、我々がこれまで進めてきた半導体表面における光励起キャリアダイナミクスの研究 [3-8]を紹介する。半導体における光誘起現象の代表的なものに、表面光起電力（Surface Photovoltage, SPV）効果と呼ばれる光励起キャリアにより表面ポテンシャルが変化する現象がある。X 線光電子分光を用いると、この SPV 効果による表面ポテンシャル変化を内殻準位のピークシフトとして観測することができる。従って、時間分解 X 線光電子分光により半導体表面における光励起キャリアの緩和ダイナミクスを調べることができる。代表的な半導体表面であるシリコン Si(111)表面では金属や分子吸着などにより、表面ポテンシャル、表面電子状態、表面構造など光励起キャリアの緩和に関するパラメータを系統的に制御すること可能である。その結果、光励起キャリアの緩和ダイナミクスにおいて時定数が大きく異なるトンネリング過程と熱的過程の2つの緩和過程が重要であることが分かった[4,5]。さらに最近では、光触媒として重要な酸化半導体表面における光励起キャリアを観測し、光励起キャリアの寿命と光触媒の触媒活性の相関について議論することが可能になってきた[7,8]。講演では時間が許せば、時間分解軟 X 線分光を用いた研究の将来展望についても紹介したい。

参考文献

- [1] S. Yamamoto, I. Matsuda, J. Phys. Soc. Jpn. 82, 021003 (2013).
- [2] 山本達、松田巖、「時間分解軟 X 線光電子分光法による表面キャリアダイナミクス研究の進展」、日本放射光学会誌「放射光」、第 27 巻、第 5 号、p.241-252 (2014).
- [3] M. Ogawa, S. Yamamoto *et al.*, Rev. Sci. Instrum. 83, 023109 (2012).
- [4] M. Ogawa, S. Yamamoto *et al.*, Phys. Rev. B 87, 235308 (2013).
- [5] M. Ogawa, S. Yamamoto *et al.*, Phys. Rev. B 88, 165313 (2013).
- [6] M. Ogawa *et al.*, Surf. Sci. 624, 70-75 (2014).
- [7] K. Ozawa, M. Emori, S. Yamamoto *et al.*, J. Phys. Chem. Lett. 5, 1953-1957 (2014).
- [8] R. Yukawa, S. Yamamoto *et al.*, Appl. Phys. Lett. 105, 151602 (2014).