

SPring-8 BL07LSUにおける時間分解光電子分光実験

Time-resolved photoemission spectroscopy experiments at SPring-8 BL07LSU

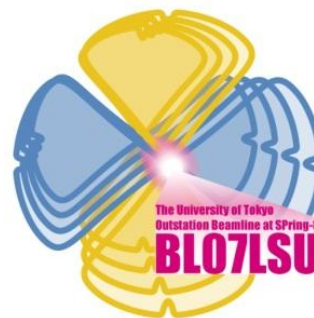
- はじめに
- 放射光を用いた光電子分光の時分割測定
- SPring-8 BL07LSUの時間分解光電子分光測定システム
研究例：Si(111)7x7表面の光誘起現象
- まとめ

松田 巖

Iwao Matsuda

東京大学物性研究所

*The Institute for Solid State Physics,
The University of Tokyo,
JAPAN*



Acknowledgements



Dr. S. Yamamoto

Ms. M. Ogawa

Mr. R. Yukawa

Mr. S. Kitagawa (NAIST)

Ms. Y. Yamamoto

Prof. M. D'angelo (Univ. Paris 6)

Mr. F. Nakamura (Bank of Japan)

Ms. Yuka Kousa (Keio)

Dr. K. Ozawa (Tokyo Institute of Technology)

Prof. Y. Tanaka (RIKEN)

Prof. H. Kondo (Keio)

Prof. H. Daimon (NAIST)

はじめに

物性を知る。

原子位置： 分子構造・結晶構造
電子状態： エネルギー、化学状態、波数(運動量)、スピン

経験(法則)

半経験的モデル

第一原理計算

光電子分光法

→ 時分割測定：相転移や反応などのリアルタイム観測

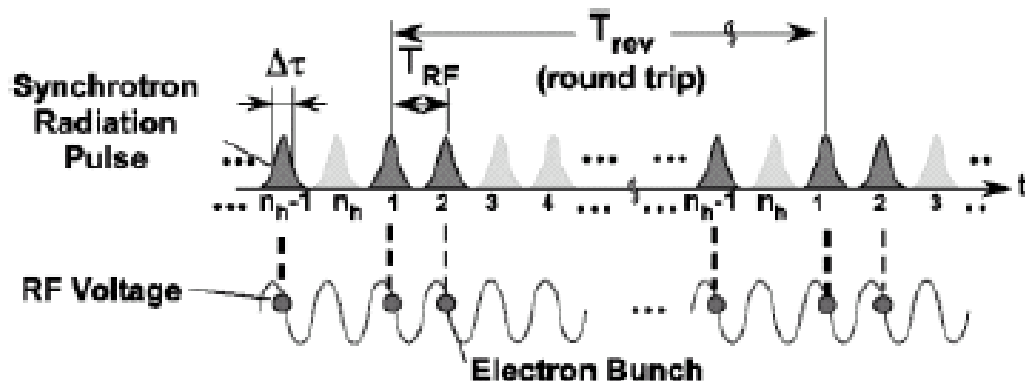
- エネルギー： HOMO、価電子
- 波数： 価電子帯
- スピン： 交換相互作用、スピン-軌道相互作用
- 内殻準位： 元素の定量分析
- 化学シフト： 化学状態の定量分析
- 回折： 分子構造、結晶構造

バンド分散

放射光を用いた光電子分光の時分割測定

パルス光源としての放射光Synchrotron Radiation (SR)

- SRの時間構造



足立伸一、田中義人
「光の時間構造を追う」
(放射光20、117(2007))

Table 1 Parameters for synchrotron radiation facilities

	エネルギー (GeV)	リング周長 (m)	T_{RF} (ns)	T_{rev} (ns)	n_h	バンチ長 $\Delta\tau$ (ps) ^{*1}	最大電流値/バンチ (mA)	最大電荷量/バンチ (nC)
SPring-8	8.0	1436	1.97	4787	2436	34 ^{*2}	3	14
PF	2.5	187	2.00	623	312	33 ^{*3}	70	44
PF-AR	6.5	377	1.97	1257	640	62 ^{*3}	60	75
UVSOR	0.75	53.2	11.1	177	16	108 ^{*4}	70	12
ESRF	6.0	844	2.82	2797	992	73 ^{*5}	16	45
APS	7.0	1104	2.84	3682	1296	65 ^{*6}	16	61
ALS	1.0-1.9	197	2.00	656	328	65 ^{*7}	25	16
BESSY II	1.7	240	1.97	795	400	16 ^{*8}	20	16

放射光を用いた光電子分光の時分割測定

KEK-PF BL-11A SB運転
ビームタイム (2008年10月)

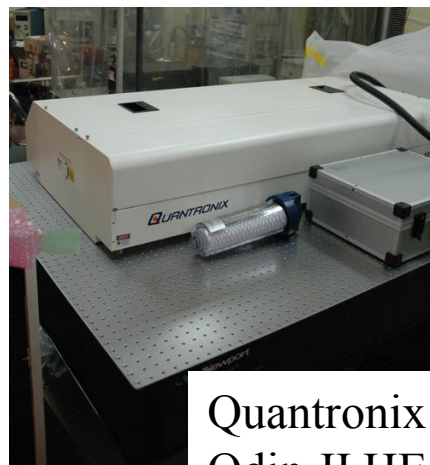
超短パルスレーザー

レーザー (Ti-Sapphire Laser, 800 nm)
<オシレーター>
nJ, ~ 80 MHz, <20 fs-pulse ,



KM-Lab
Halcyon

<マルチパス増幅器>
> 2.5mJ, 1~2 kHz,
< 40 fs pulse



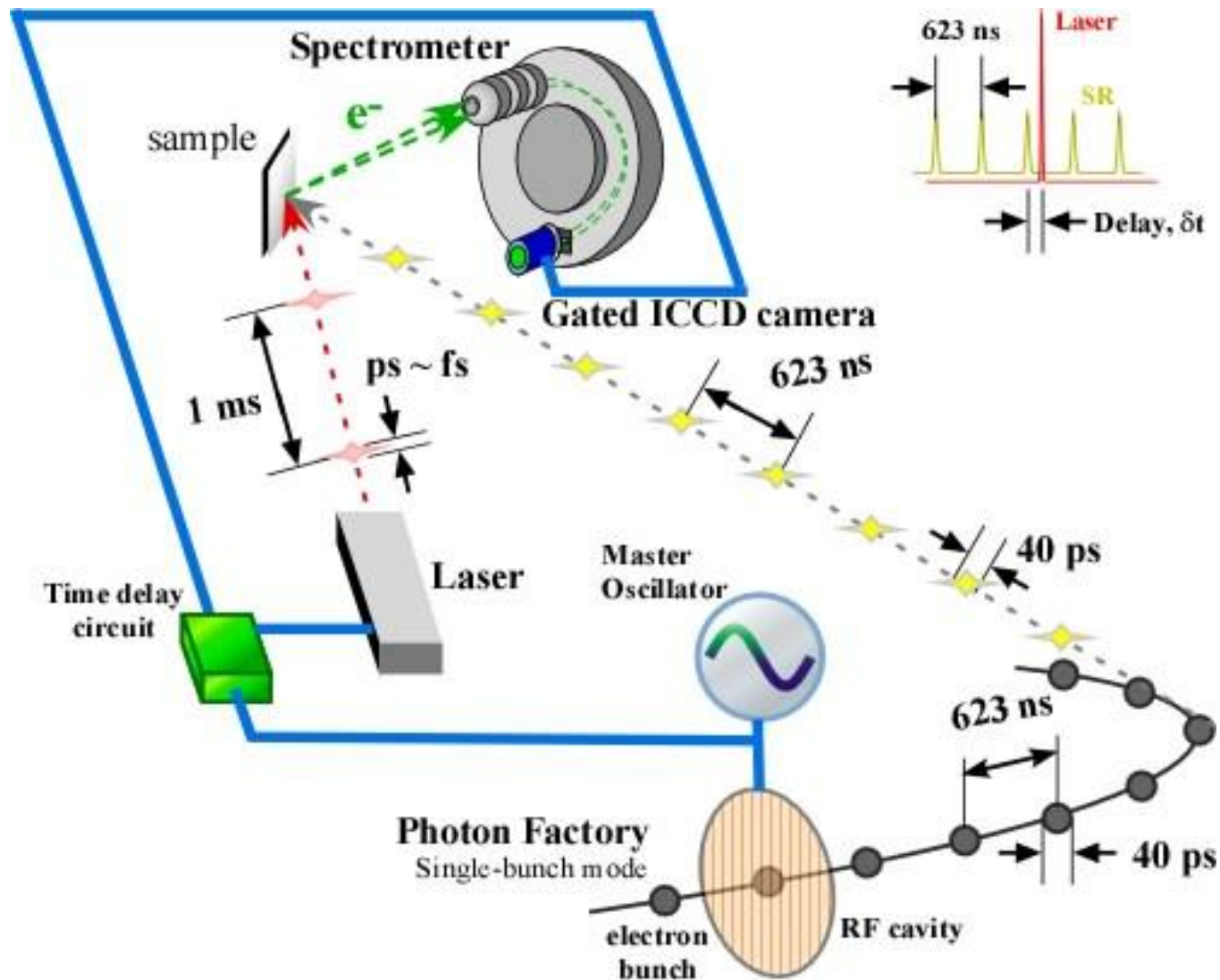
Quantronix
Odin-II HE



KEK-PF BL-11Aでの実験の様子

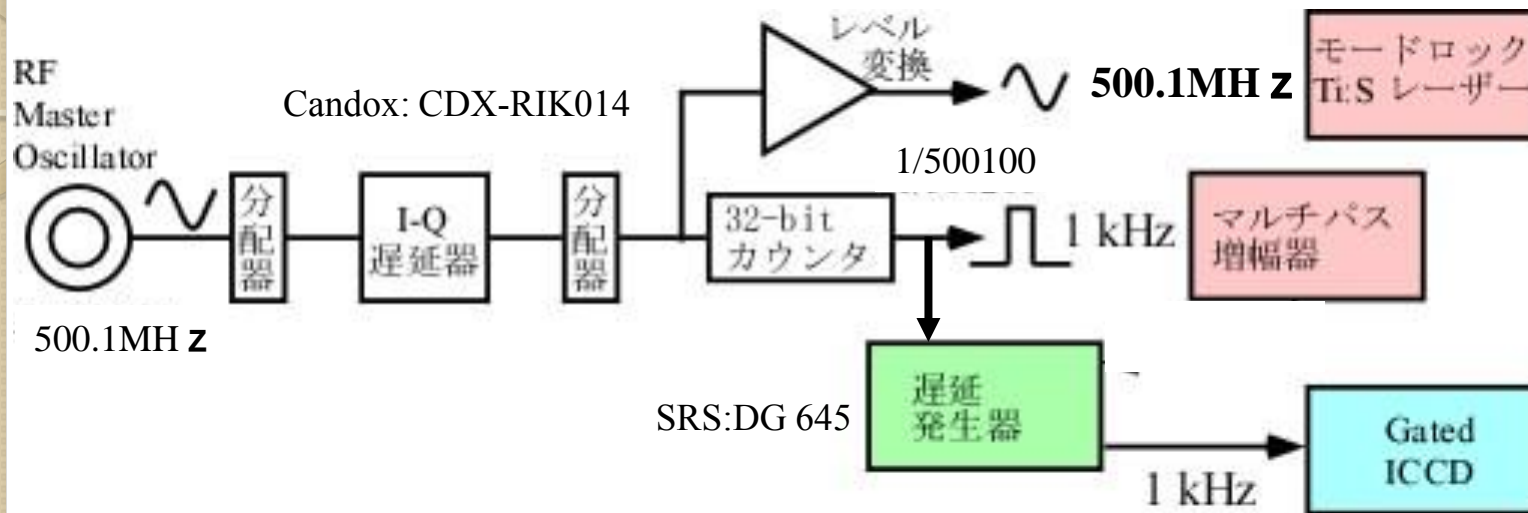
放射光を用いた光電子分光の時分割測定

- 既存の半球型電子分析器を用いた測定



放射光を用いた光電子分光の時分割測定

タイミング調整



光源

SX放射光パルス：パルス幅 40ps、パルス間隔 623ns

IR レーザーパルス：パルス幅 < 40 fs、パルス間隔 1ms

遅延システム

高周波遅延回路 (Cadox CDX-RIK014) : total jitter 10ps

電子分析器

(VG Scienta SES-2002)

- 電子分析器：電子分光器 + 電子検出器

半円球型 MCP+蛍光スクリーン+CCD

MCP: 500 ps (大浦氏(SPring-8), private communication)

Gated ICCD (Hamamatsu C7772-01, C6808-21) : 1 μ s

cf. CCD (VG Scienta) : 15-80 frames/s [66.7-12.5 ms]

蛍光スクリーン: 1 ms (Hamamatsu, 10% afterglow time)

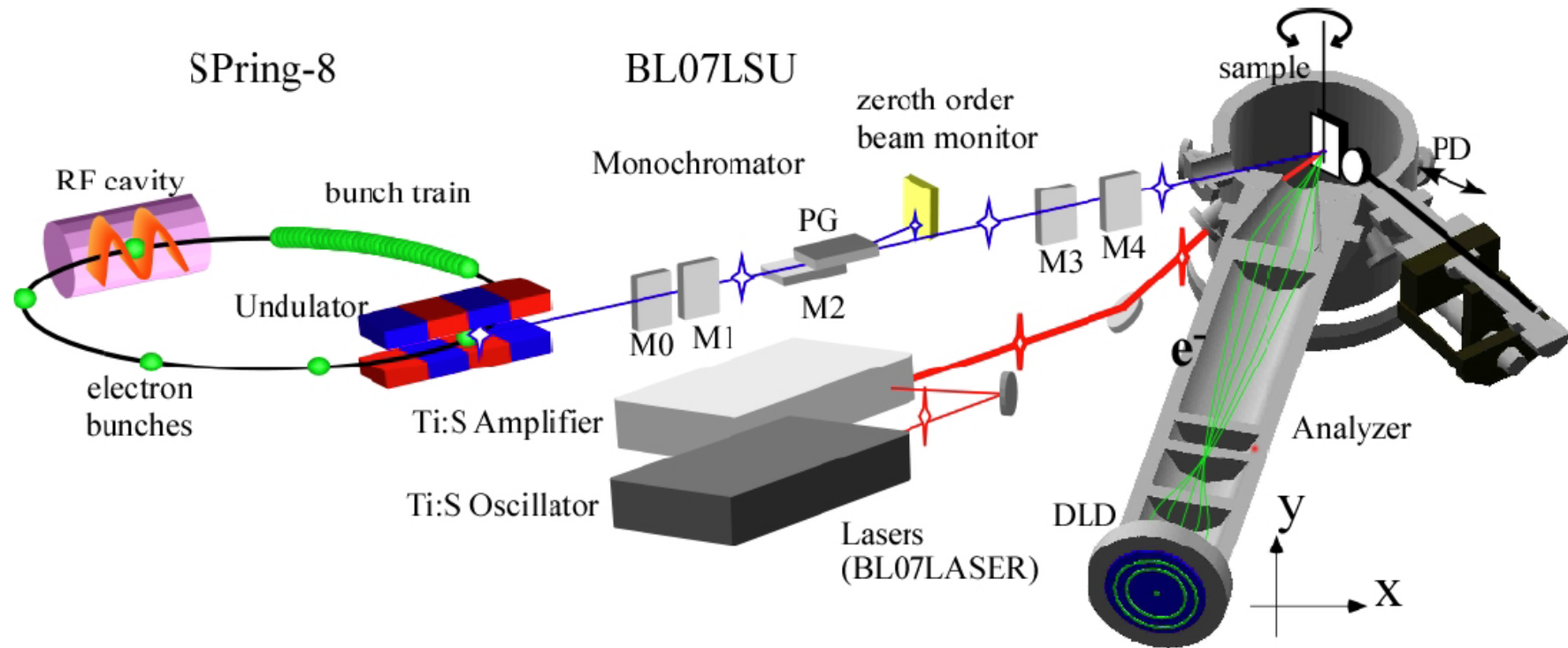
放射光を用いた光電子分光の時分割測定

特徴と問題点

- 電子蓄積リングの特殊な運転モードが必要である。
3-4 週間/1年
- 測定時間が永久的に長い。
 $500\text{MHz}/1\text{MHz} = 500\text{倍}$
 $500\text{MHz}/1\text{kHz} = 500,000\text{倍}$
- 放射光パルスのロスが多い。
ポンプパルス1個-プローブパルス1個
 $1\text{MHz (シングルバンチモード)} : 1\text{kHz (ポンプ-プローブ法)} = 1000 : 1$
- 放射光運転モードと分析器・検出器の相性がある。
検出器が時間分解能の限度となってしまう。

SPring-8 BL07LSUの時間分解光電子分光測定システム

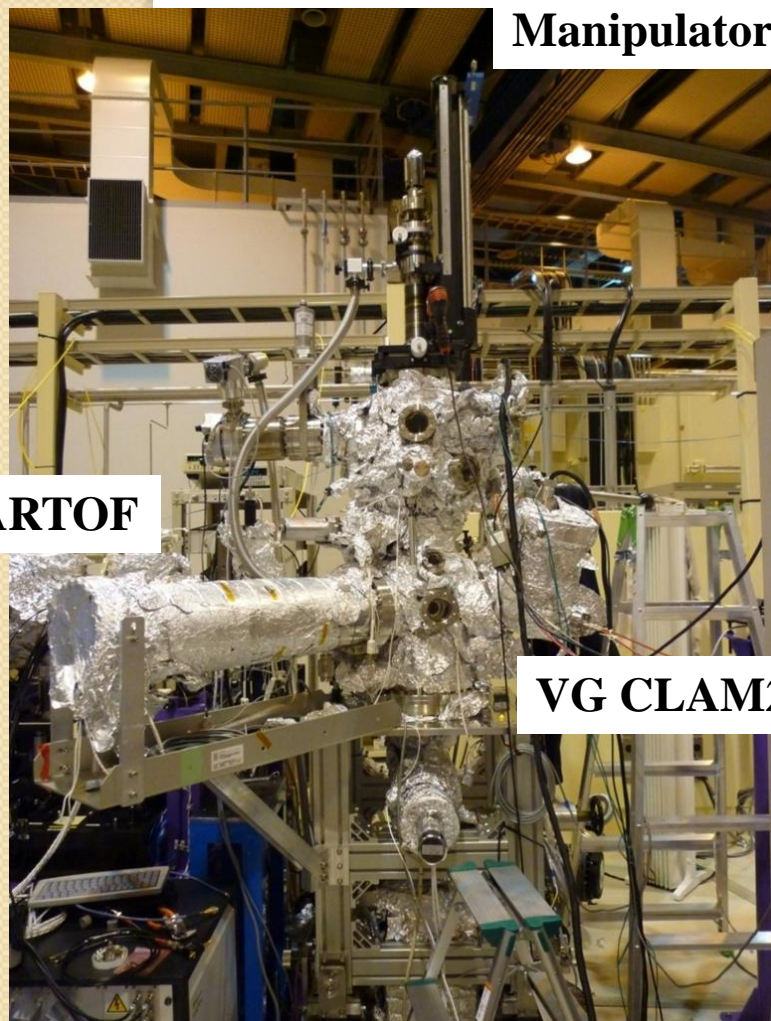
M. Ogawa, S. Yamamoto *et al.*, Rev. Sci. Instrum. accepted.



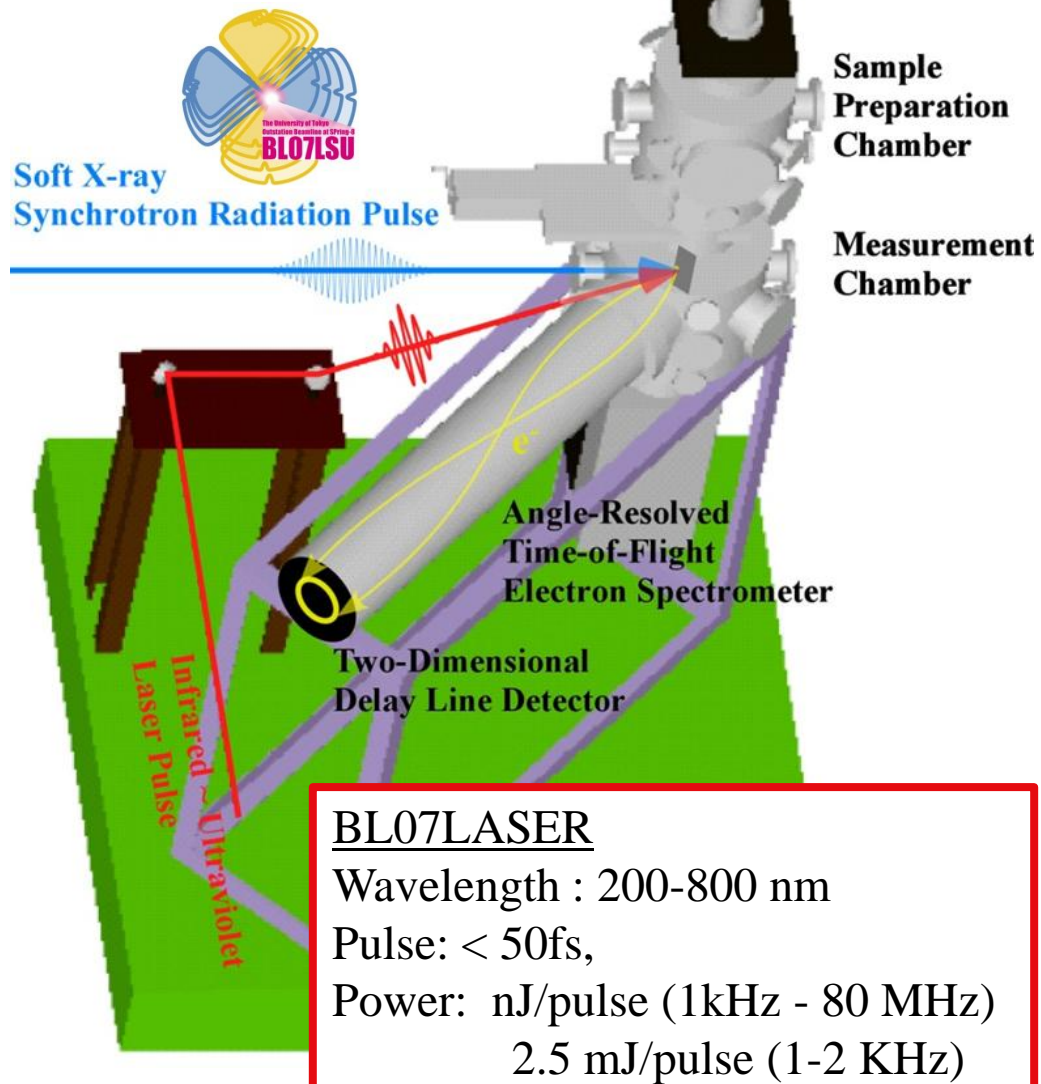
- Femtosecond-pulse laser
- Picosecond-pulse SR
- High-resolution two-dimensional angle-resolved TOF analyzer
- Hybrid operation mode in a storage ring

SPring-8 BL07LSUの時間分解光電子分光測定システム

時間分解軟X線分光ステーション



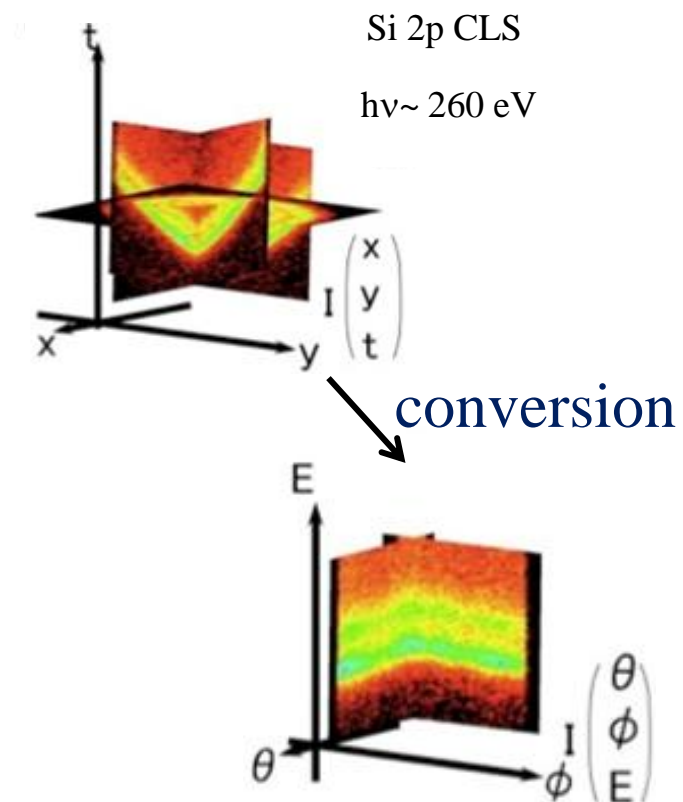
Ultrafast Time-Resolved Photoemission Spectroscopy



SPring-8 BL07LSUの時間分解光電子分光測定システム

飛行時間型角度分解電子分析器

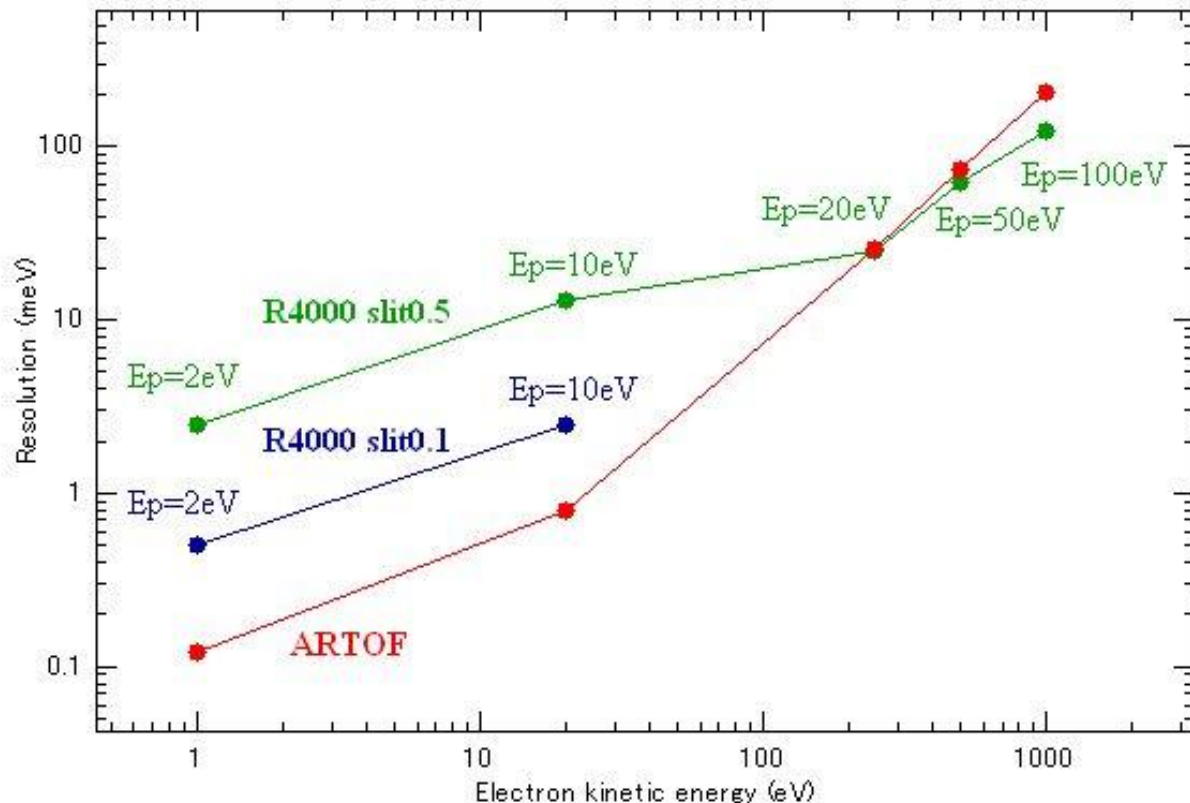
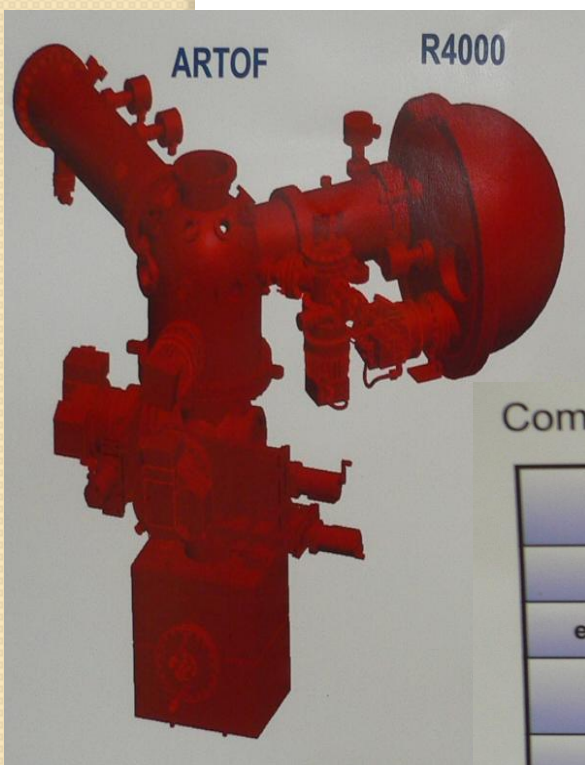
ELECTRON SPECTROMETER
Customized ARTOf 10k



Property	Specification
Energy Resolving Power	> 10,000 (theoretical 16,000)
Energy Resolution	150 μeV *
Kinetic Energy Range	0.2 - 1000 eV
Maximum Angular Acceptance	$\pm 18^\circ$
Angular Modes	$\pm 7^\circ, \pm 15^\circ$
Transmission/Imaging Mode	Yes
Angular Resolution	0.08° *

半球型電子分析器 との比較

IDEESS, BESSY
Cosmin Lupulescu (BESSY)



Comparison between the ARTOF and the hemispherical analyzer

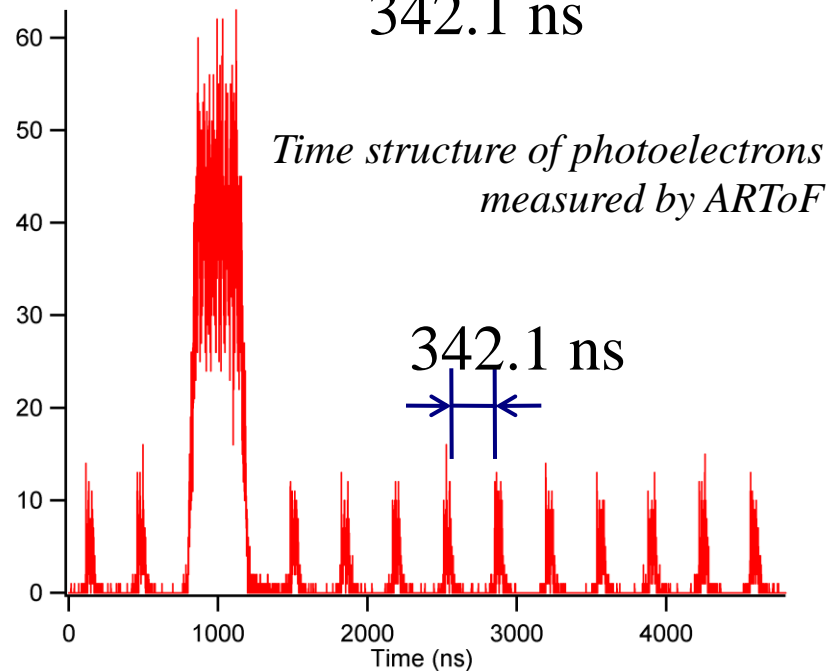
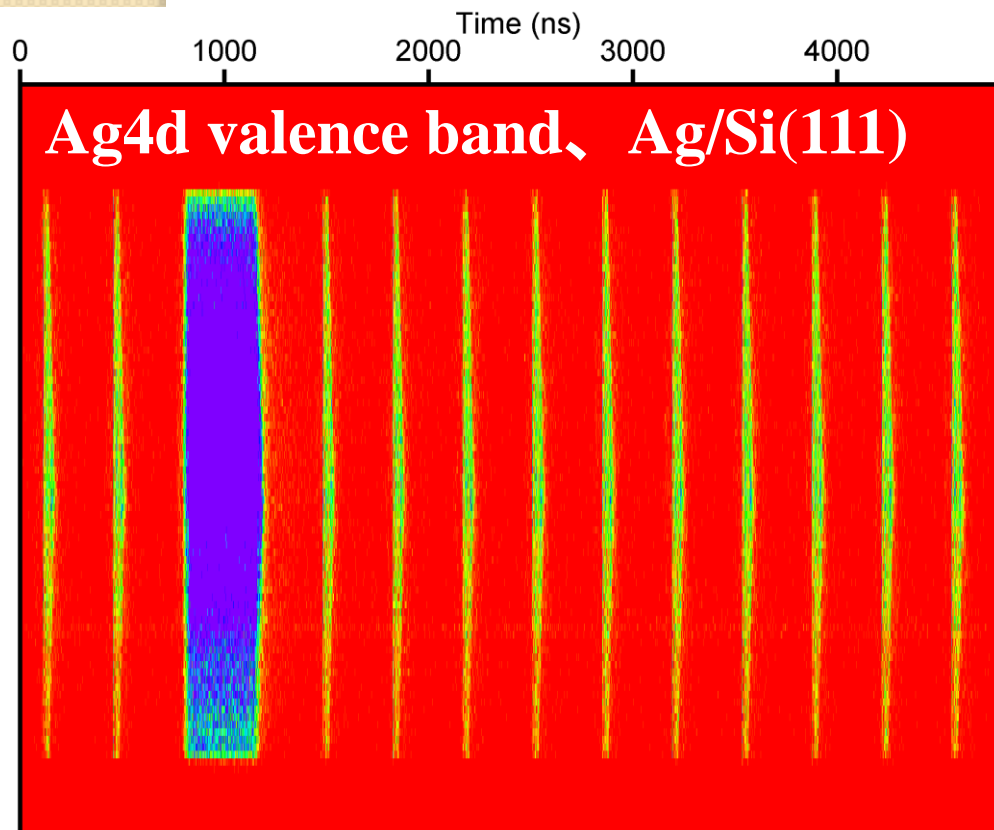
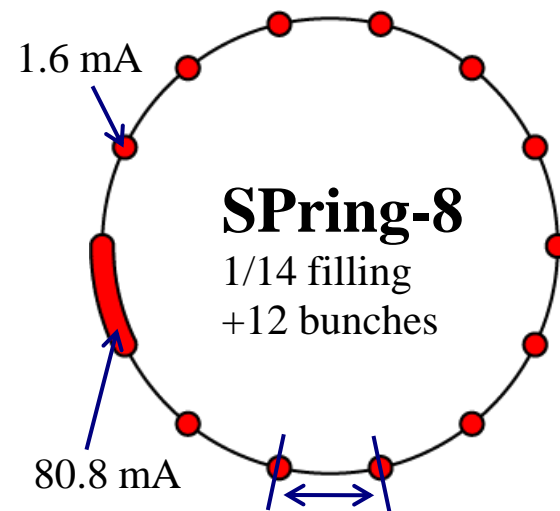
	time-of-flight analyzer (Scienta ARTOF 10k)	hemispherical analyzer (Scienta R4000)
energy resolution	150 μ eV	1.8 meV
energy resolving power	10000	1750 (for 0.2 mm slit)
angular resolution	0.08° (0.4mm sample diameter)	0.4° (1mm sample diameter)
slits	0 (total cone detection)	9
detector	MCP/delay-line	MCP/CCD
repetition rate	max. 3 MHz	-
transmission	250 x R4000 analyzer	1

スリット幅によって
最大625倍

SPring-8 BL07LSUの時間分解光電子分光測定システム

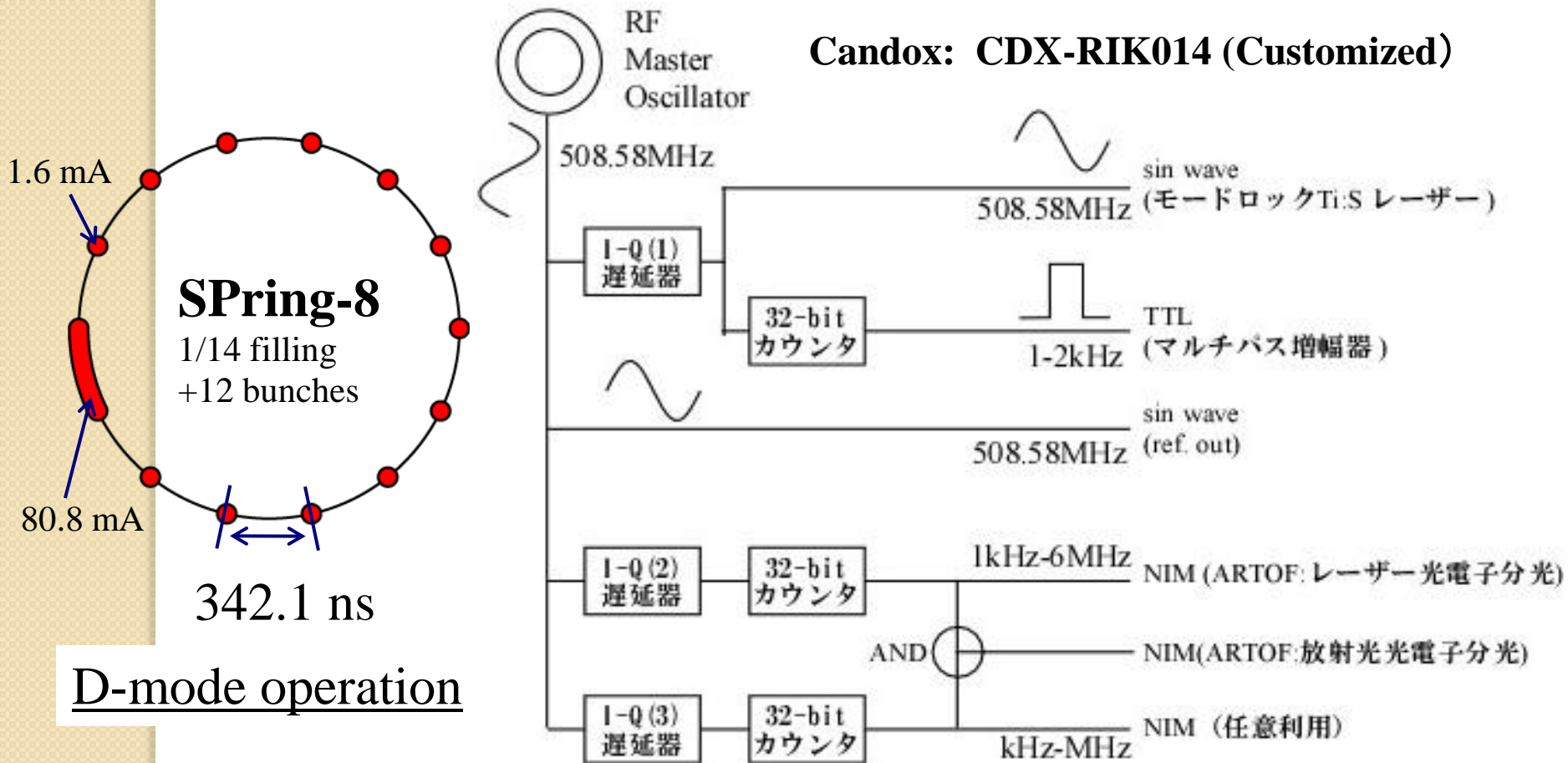
SPring-8 D-mode operation

○ 光電子評価測定



SPring-8 BL07LSUの時間分解光電子分光測定システム

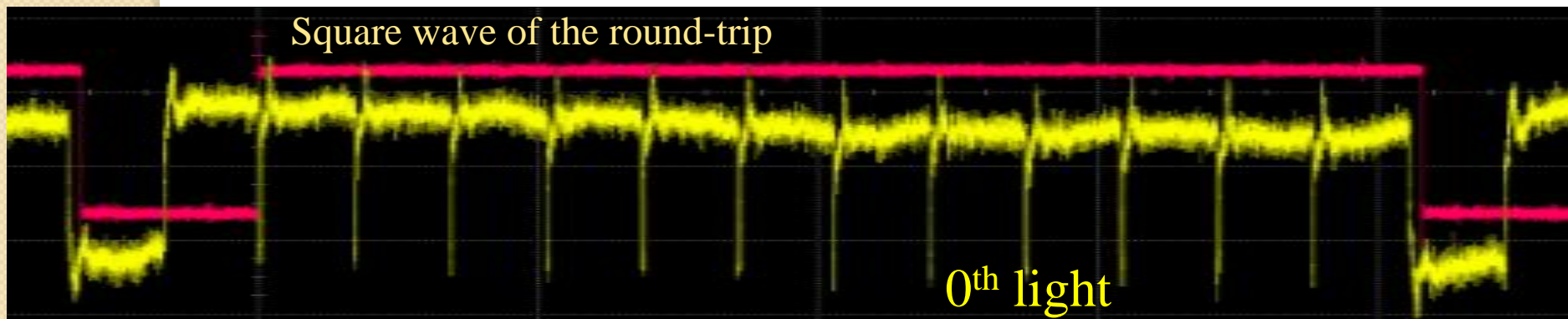
○ SPring-8運転モードに合わせた同期・遅延制御システム



SPring-8 BL07LSUの時間分解光電子分光測定システム

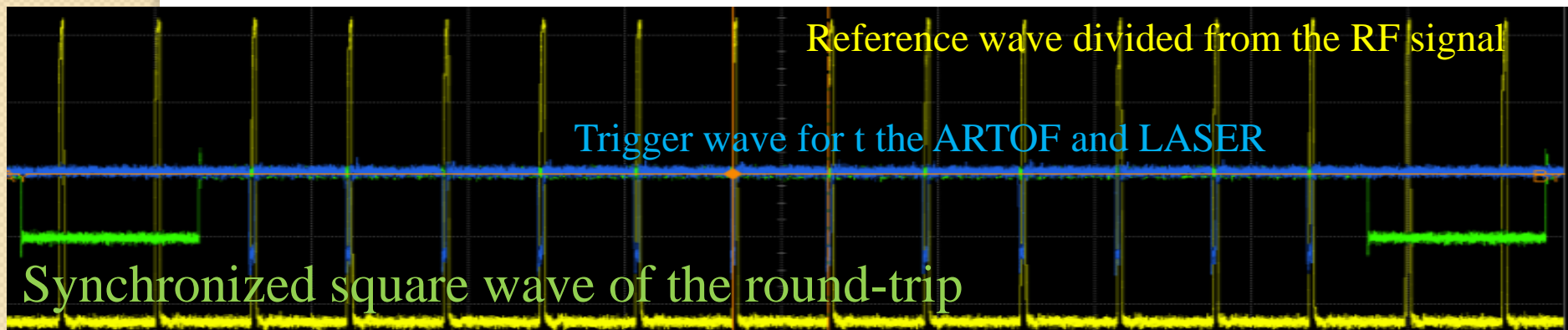
- SPring-8運転モードに合わせた高精度同期システム

Square wave of the round-trip



Reference wave divided from the RF signal

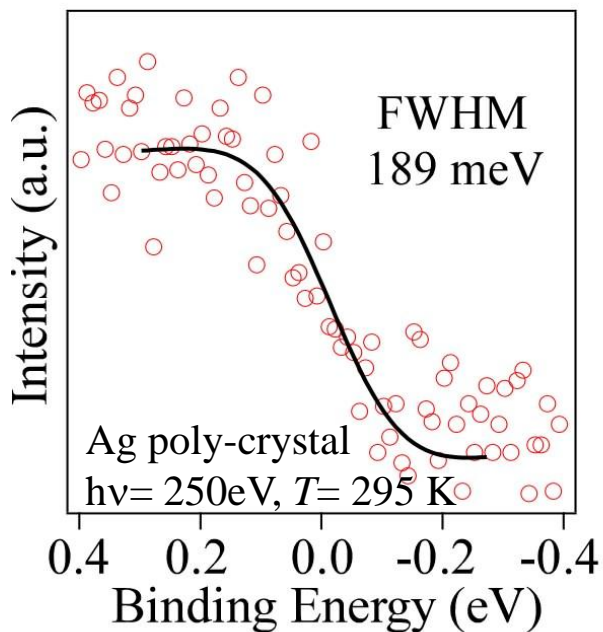
Trigger wave for the ARTOF and LASER



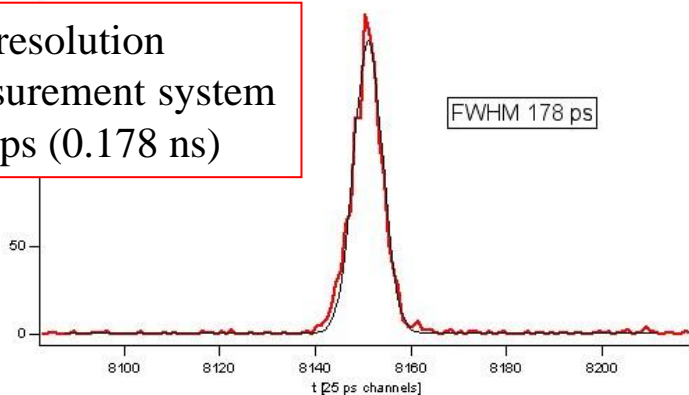
No photoemission measurements at the bunch train

SPring-8 BL07LSUの時間分解光電子分光測定システム

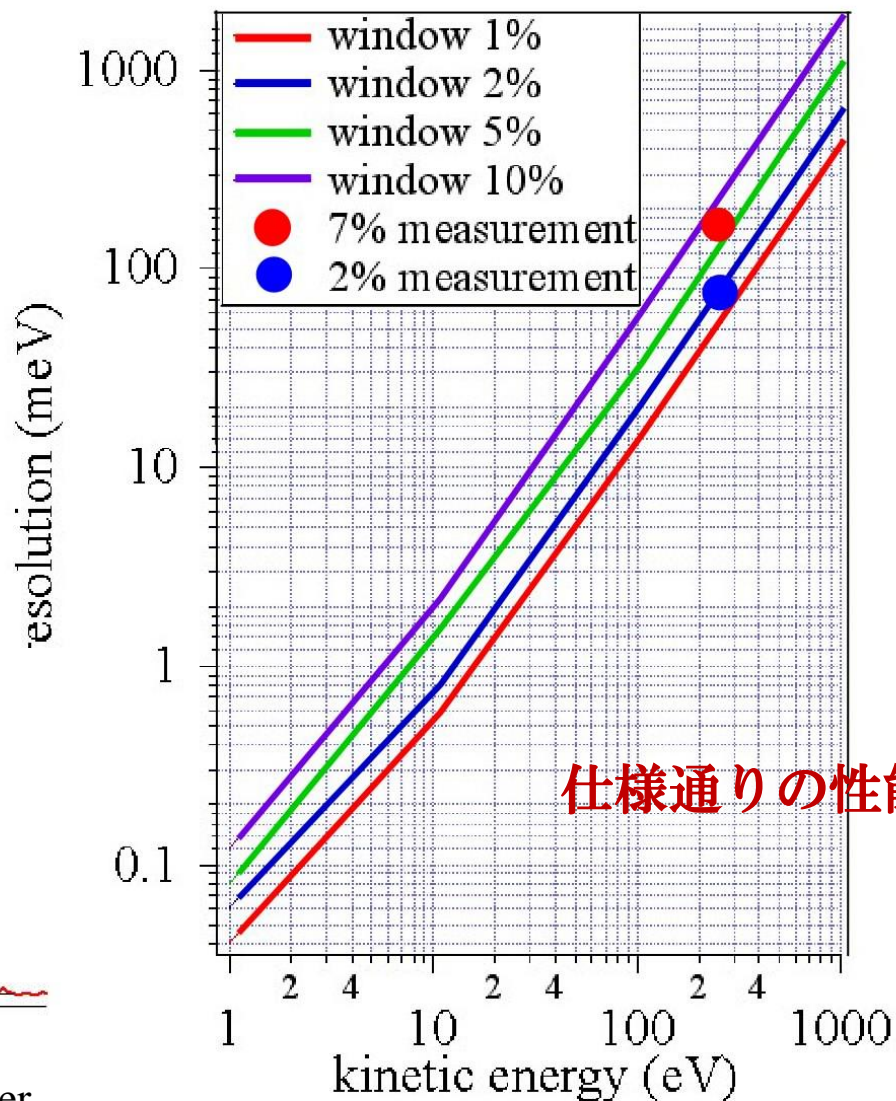
エネルギー分解能評価



Total time resolution
of the measurement system
 $\Delta T = 178\text{ ps}$ (0.178 ns)



Direct photon beam into the analyzer



SPring-8 BL07LSUの時間分解光電子分光測定システム

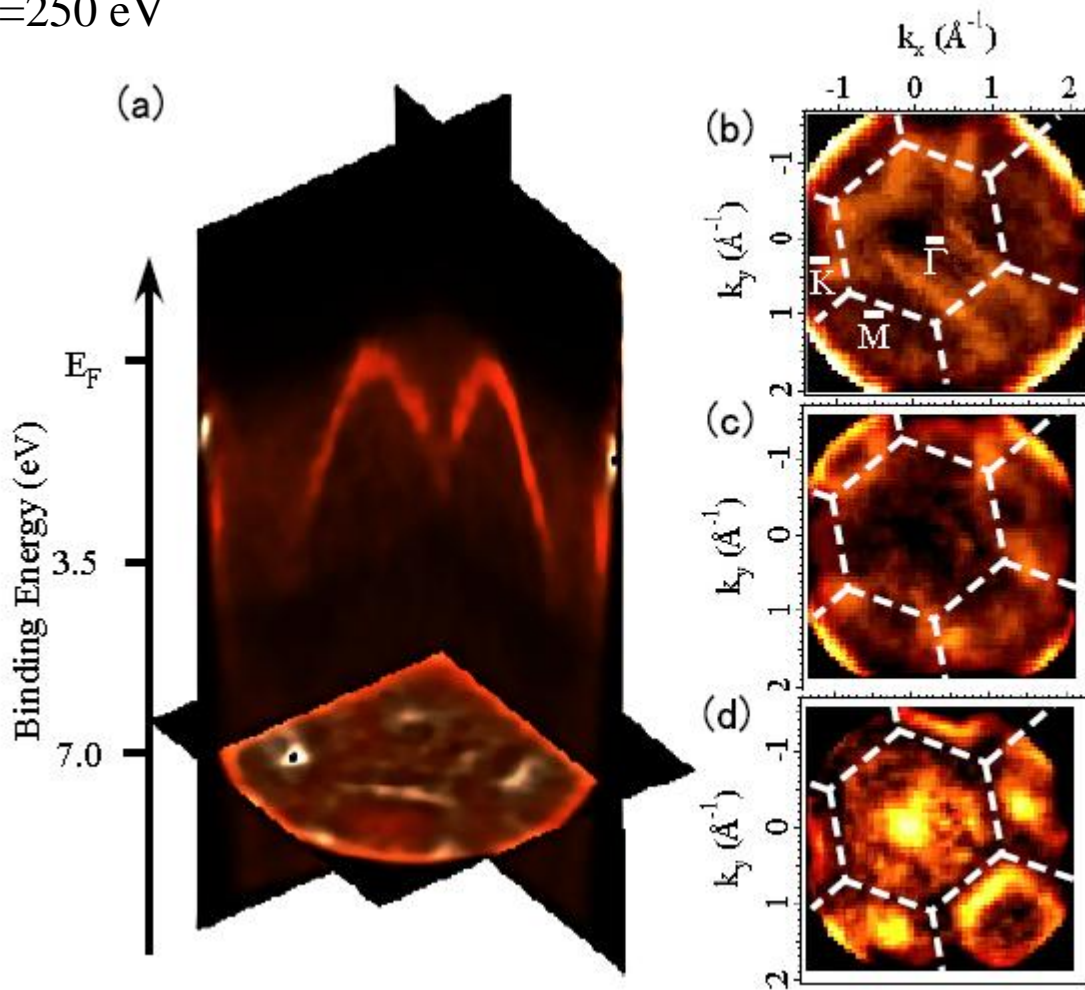
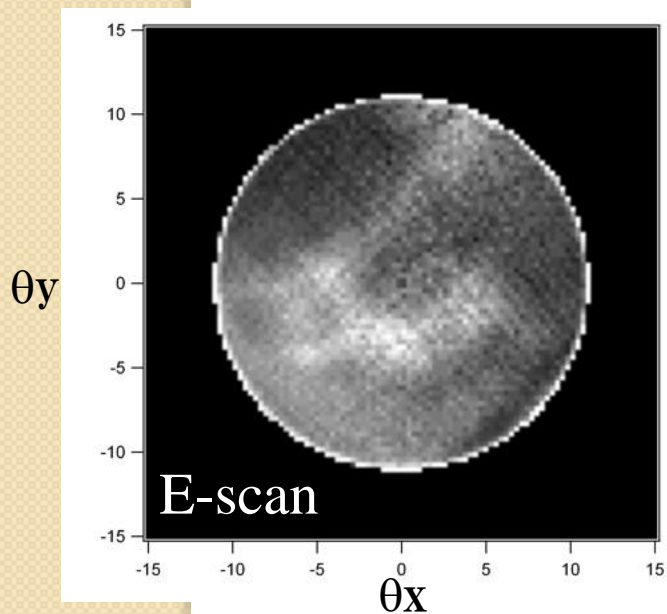
○ 2-D angle-resolved mapping **without** rotation of sample or analyzer

Si(111)7x7 : bulk valence band, $h\nu=250$ eV

θ_x 、 θ_y range= $\pm 12.5^\circ$

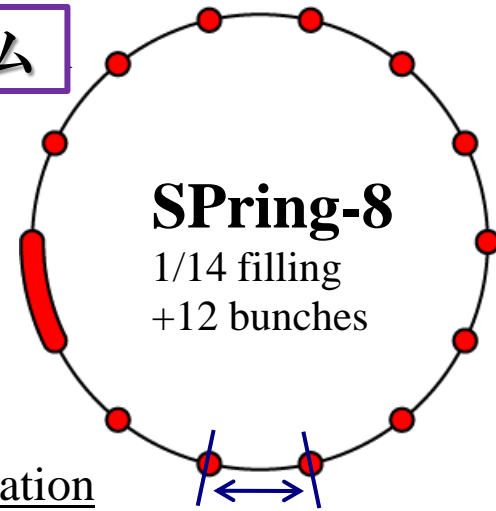
(θ_x 、 θ_y 、Max. range= $\pm 15^\circ$)

Energy range = 17.5 eV



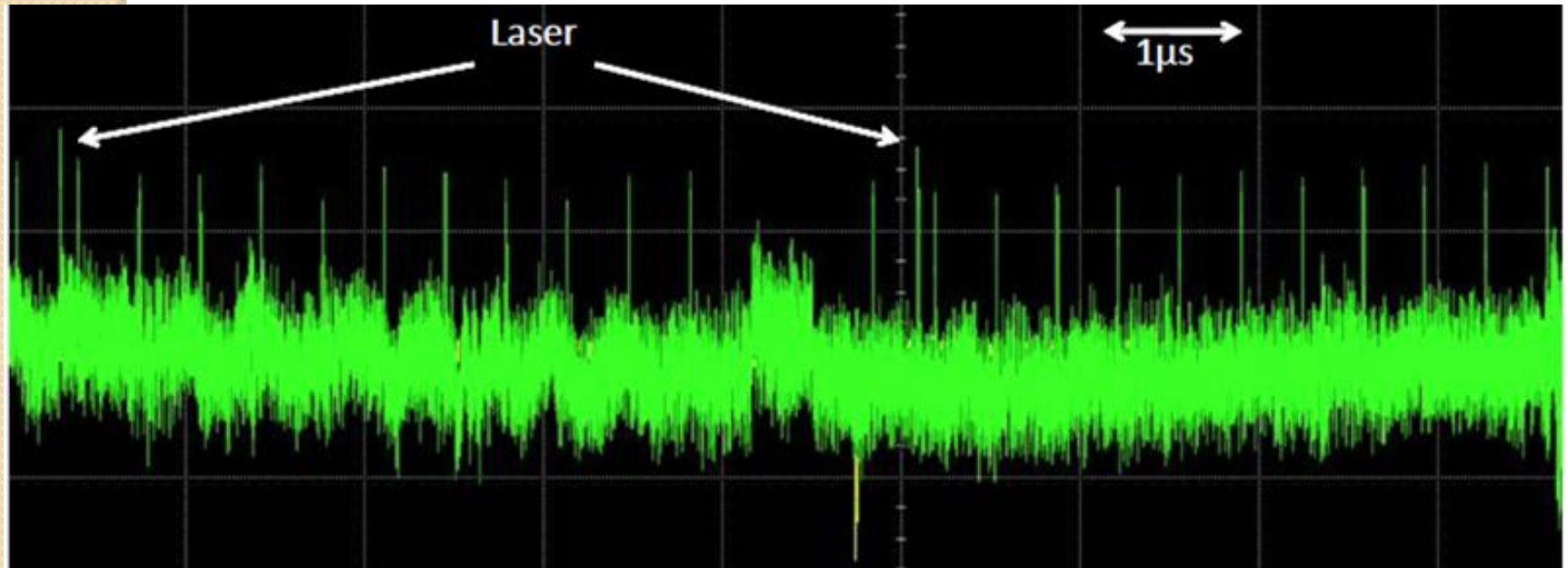
SPring-8 BL07LSUの時間分解光電子分光測定システム

超短パルスレーザーと放射光の同期・遅延制御



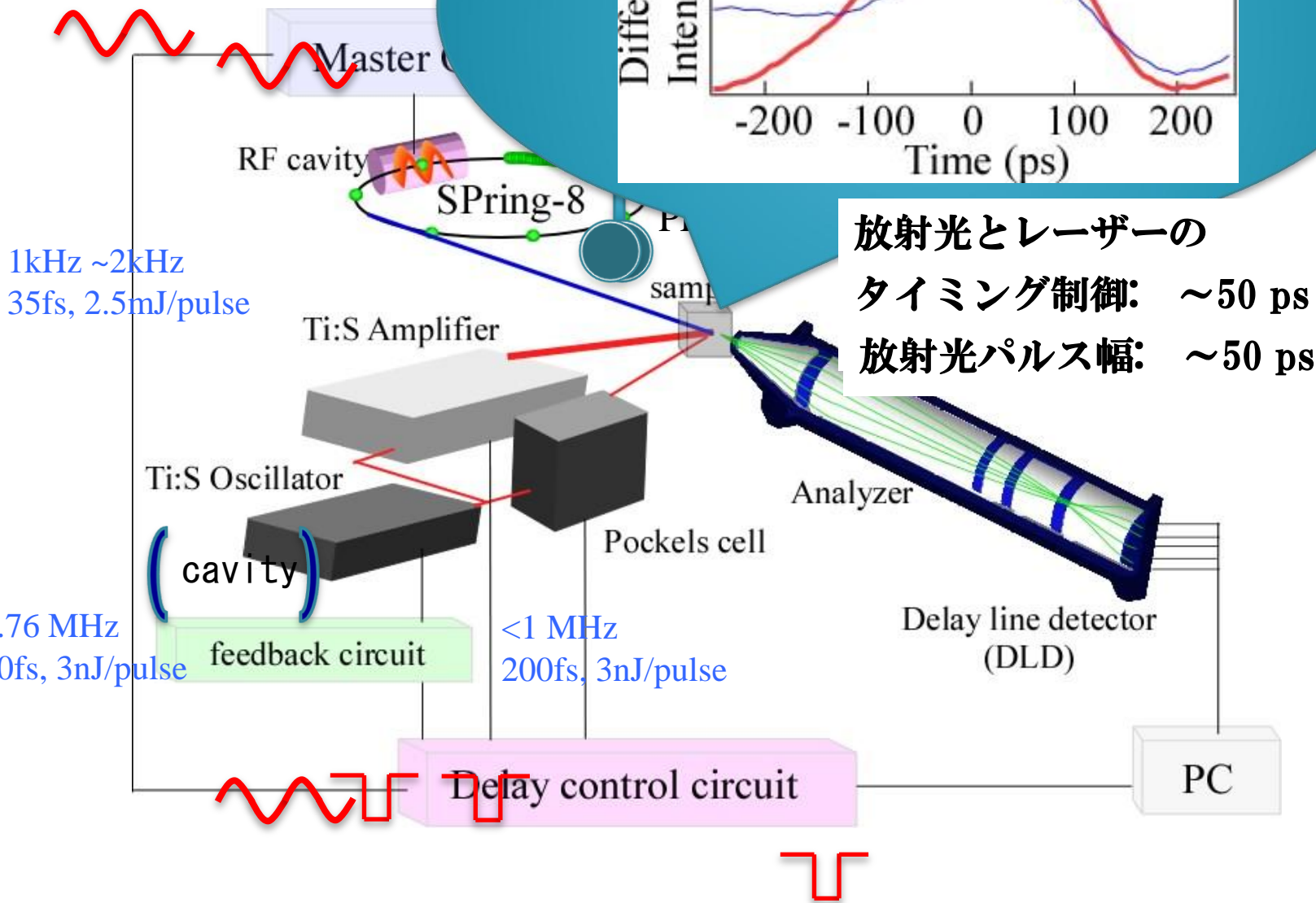
D-mode operation

342.1 ns



装置概要

508.58 MHz



SPring-8 BL07LSUの時間分解光電子分光測定システム

半導体表面

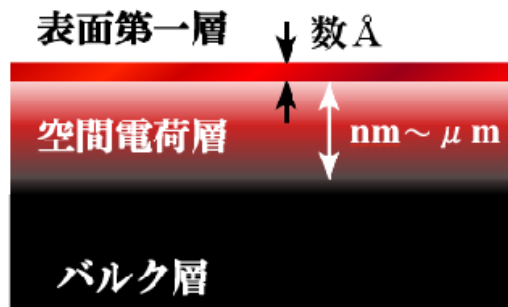


図1 半導体表面近傍の様子

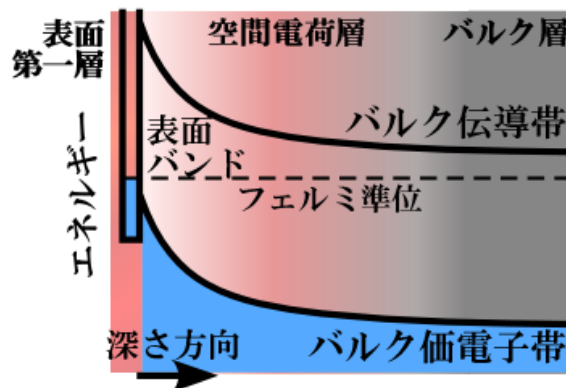
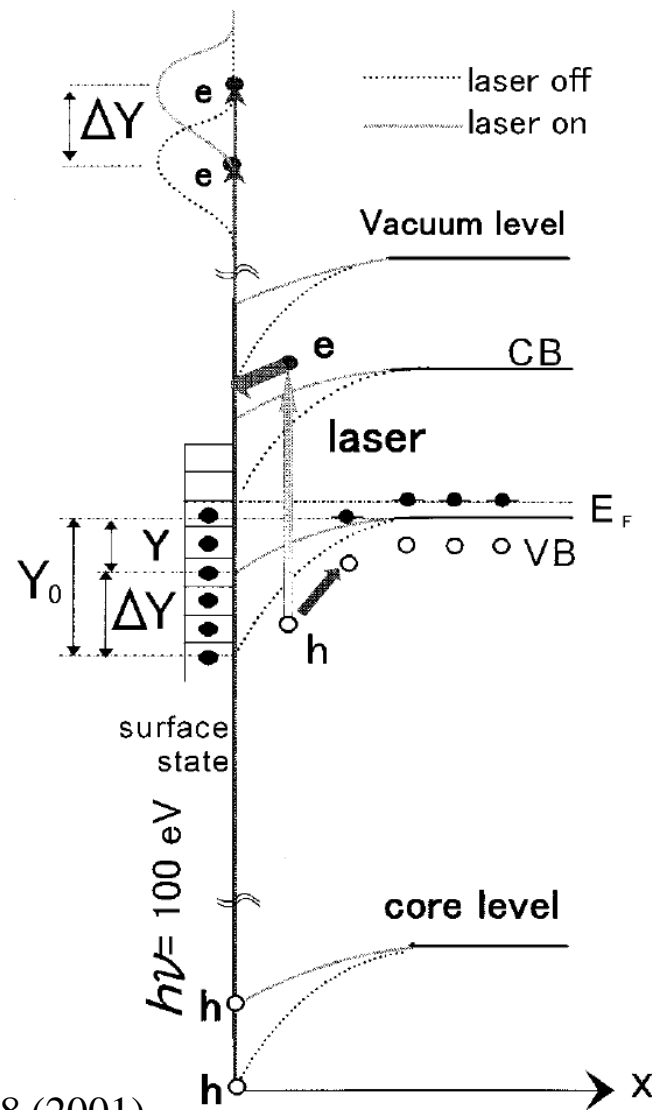
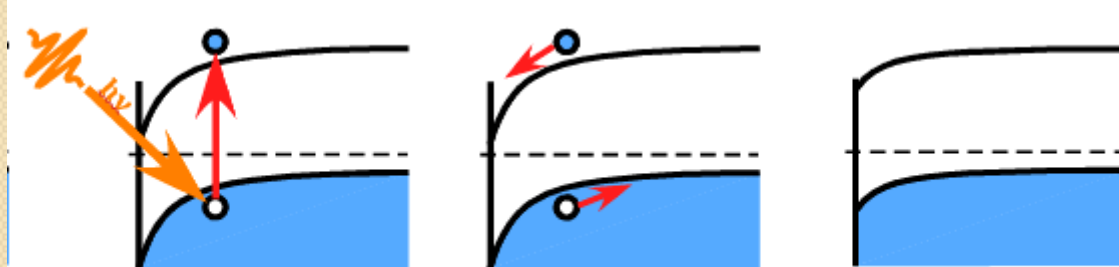


図2 半導体表面近傍の深さ方向に対するエネルギーダイアグラム



Surface Photo-Voltage (SPV) Effect

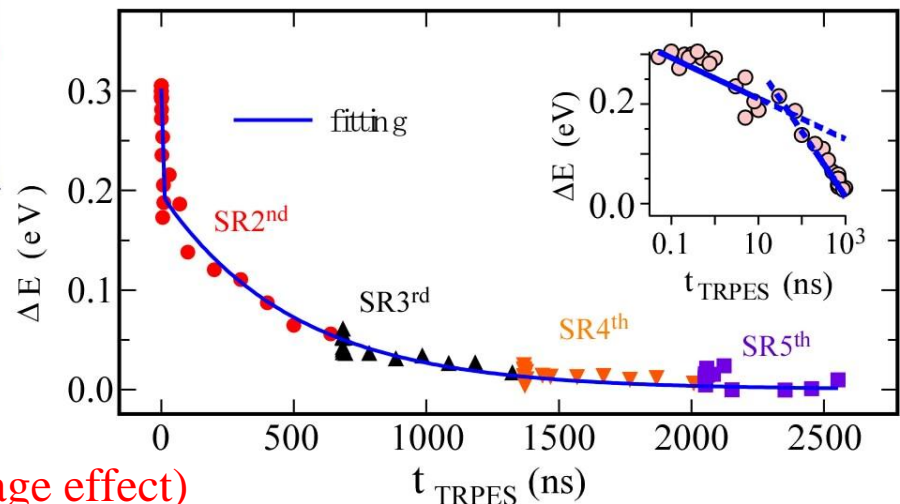
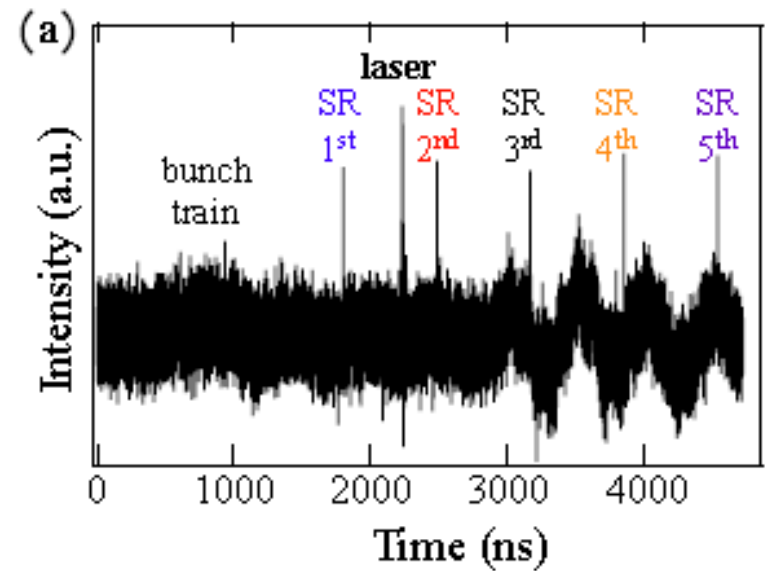
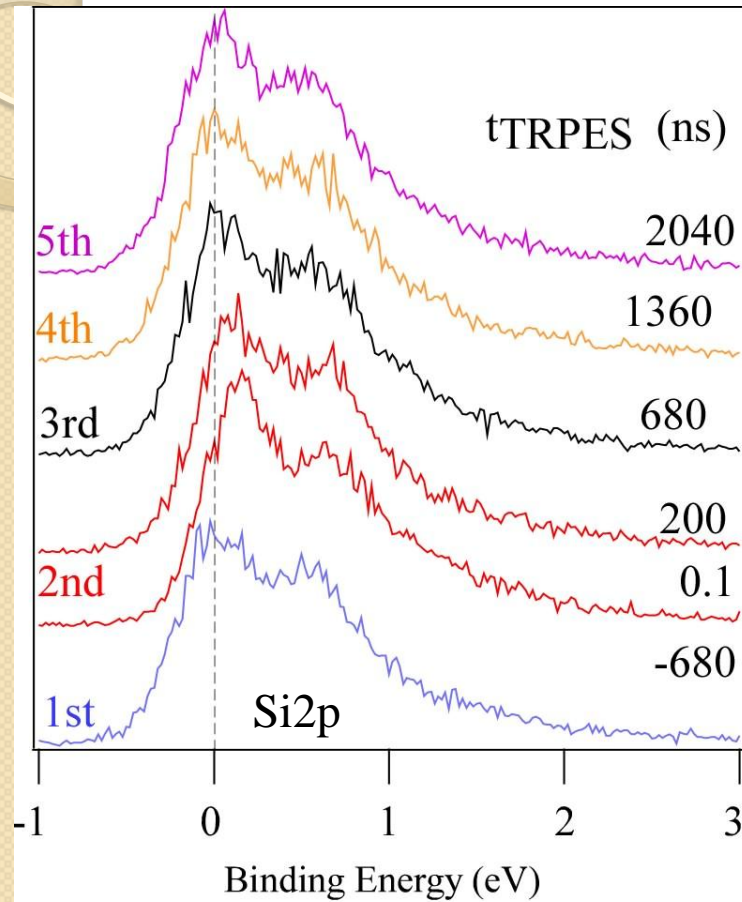


光照射でバンド曲がりが平らになる。

SPring-8 BL07LSUの時間分解光電子分光測定システム

Si(111)7x7


$h\nu=250$ eV



Real-time monitoring of carrier dynamics
(i.e., relaxation of SPV (surface photovoltage effect)
in a wide time scale from sub-ns to μ s
with time-resolution of <50 ps.


まとめ

 高輝度軟X線ビームラインSPring-8BL07LSUにおいて、時間分解光電子分光用実験ステーションが完成した。

 時間分解光電子分光測定を有利に行うために、飛行時間型角度分解電子分析器及び高精度遅延時間回路を立ち上げた。

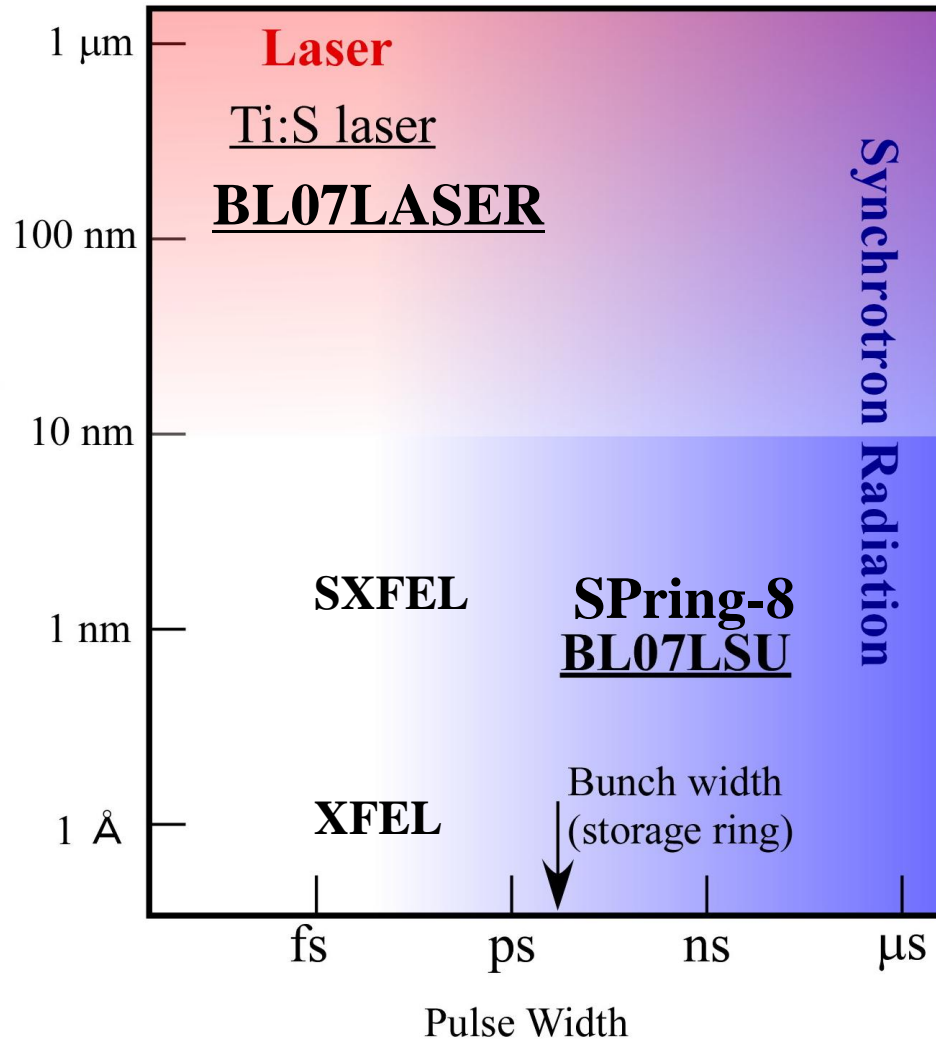
高効率検出、放射光パルスが無駄にしない、時間分解能＝放射光パルス幅
⇒通常のビームタイムで、確実に時間分解光電子分光実験が実現。

 サンプル回転なしで2次元広波数領域バンドマッピングが実現した。

 フェムト秒パルスレーザーと組み合わせてピコ時間分解内殻光電子分光測定が実現した。

 Si結晶表面における光誘起現象のリアルタイム追跡を行った。

まとめ



時間分解放射光光電子分光

$h\nu > 250$ eV: 単光子光電子分光
($\Delta t \sim 50$ ps, $\Delta E = 10$ meV-range)

時間分解レーザー光電子分光

$h\nu = 1.5 - 3$ eV: 多光子光電子分光
 $h\nu = 6$ eV: 単光子光電子分光
($\Delta t \sim 50$ fs, $\Delta E = 10$ meV-range)