

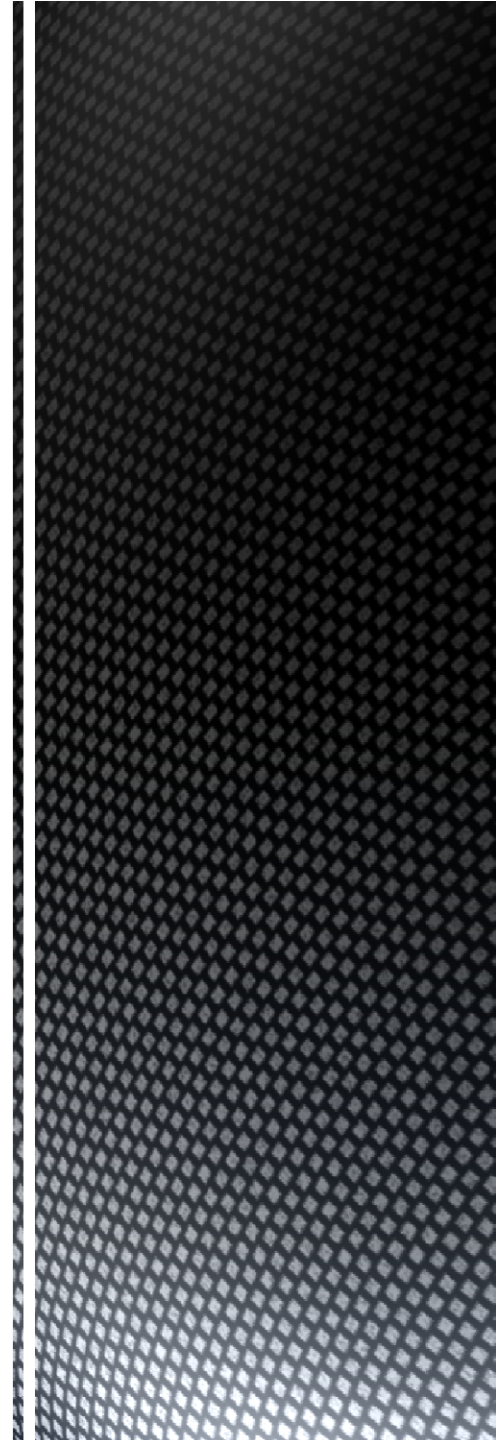


新光源による 高速軟X線分光の研究展開

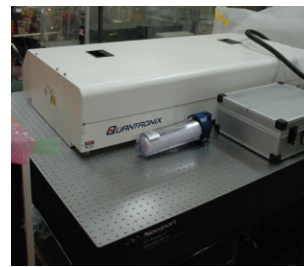
Time-resolved soft x-ray spectroscopy with the new light source

松田巖
東京大学物性研究所

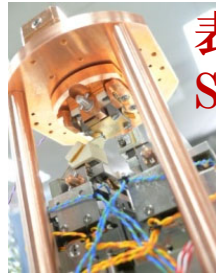
Iwao Matsuda
The institute for Solid State Physics, the University
of Tokyo



東京大学物性研究所 軌道放射物性研究施設



Femtosecond Pulse Laser



表面磁気伝導
SPM



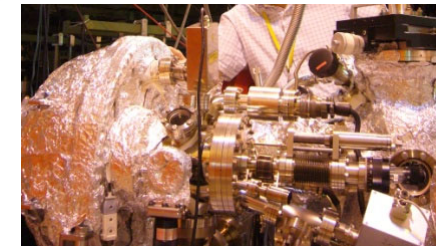
角度分解光電子分光
内殻光電子分光



IR~VIS~UV
レーザー光電子分光

Nanoprobes
Atomic image
Quantum transport

Bending magnet
(KEK-PF BL-18A)



スピン分解光電子分光

X線吸収分光、発光分光



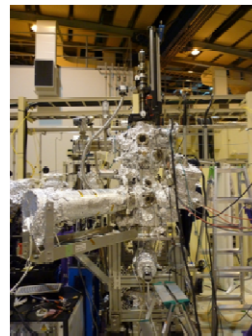
Revolver Undulator
(KEK-PF BL-19B)

SX

High Brilliant SX

VUV~SX

Revolver Undulator
(KEK-PF BL-19A)



25m-Long Undulator
(Spring-8 BL-07LSU)

時間分解軟X線光電子分光
高分解能発光分光
ナノビーム光電子分光

東京大学物質科学アウトステーションビームライン:BL07LSU

東京大学放射光連携研究機構

SPring-8



2009年10月9日開所式



27m 長尺アンジュレータ

基本波:250eV~2keV

輝度: 10^{19} photons/s/mm²/mrad²/0.1b.w.

偏光:水平垂直直線偏光(優先)、左右円偏光



偏光制御型軟X線アンジュレータ



高分解能軟X線分光ビームライン

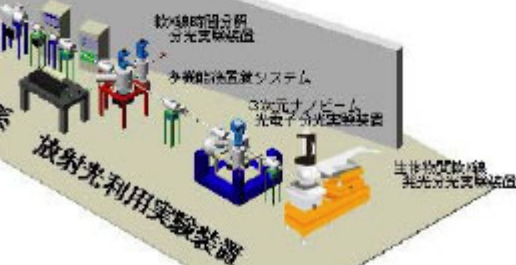
エネルギー範囲:250 eV ~2 keV

エネルギー分解能: $E/\Delta E > 10,000$

光ビームサイズ: $x < 10 \mu\text{m}$

光子数: $> 10^{12}$ photons/s

ビームライン・分光光学系

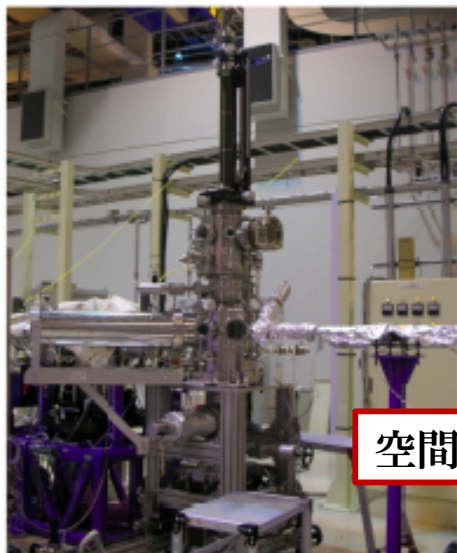


先端分光実験ステーション群

- ・相転移・触媒反応のリアルタイム追跡
- ・ナノデバイス構造の電子状態解析
- ・溶液、生体物質の物性、機能解明

東京大学物質科学アウトステーションビームライン:BL07LSU

4つの先端分光用実験ステーション



時間分解軟X線分光実験ステーション
TR-SX spectroscopy

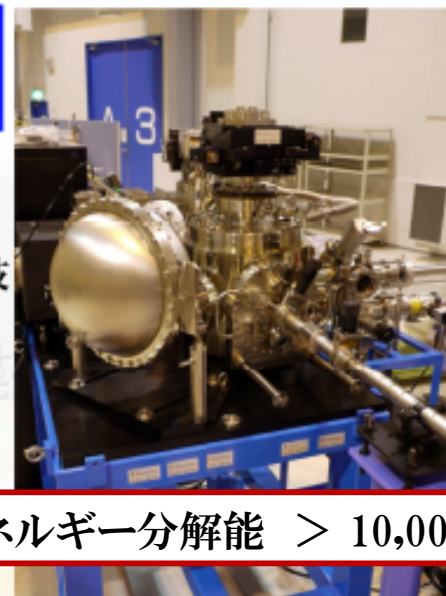
< 50 ps (放射光パルス幅) での制御
 $\Delta\theta_x, \Delta\theta_y = \pm 13$ 度角度分解測定

高輝度軟X線と超短パルスレーザーの同期・時間遅延の高精度な制御。
2次元角度分解電子分光の時分割測定

空間分解能: 75 nm

三次元走査型光電子顕微鏡
3D nano-ESCA

空間分解能: 50 nm (x,y)
深さ方向分解能: 0.1 nm (z)
(MEMによる深さプロファイリング技術)



超高分解能軟X線発光ステーション
HORNET

世界最高のエネルギー分解能
気・液・固体の電子状態を測定

エネルギー分解能 > 10,000

フリーポート実験ステーション
Free-Port station

国内外の研究者の装置持ち込みによる利用実験

コヒーレンス実験、広角角度分解光電子分光測定

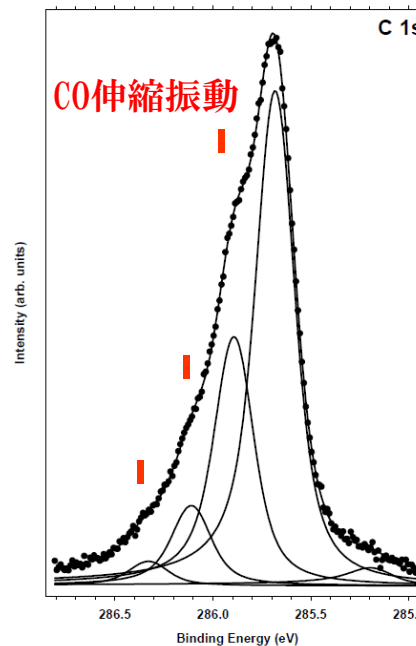
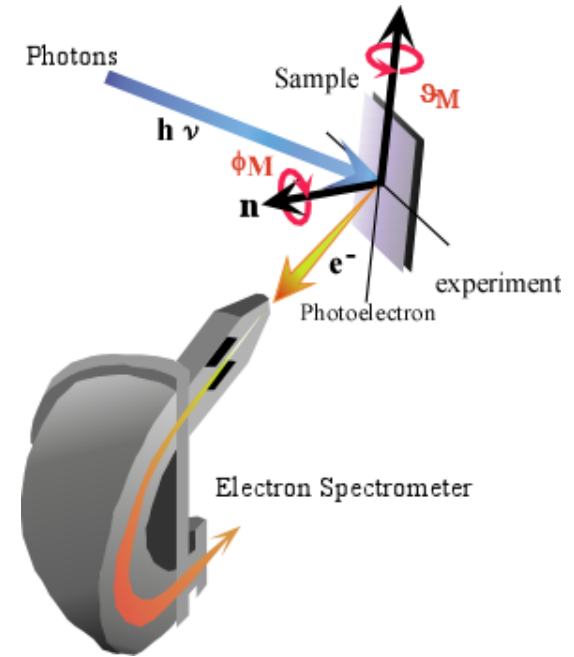
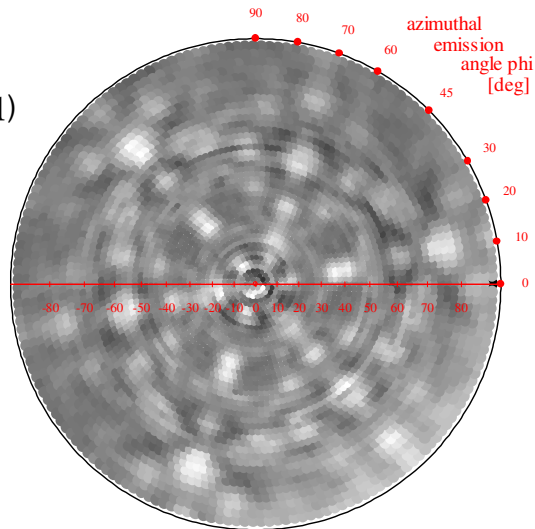
Photoemission Spectroscopy

■ 光電子分光・回折

- 全種類の元素特定
- 化学種、化学サイトの特定
- 電子状態、電子構造決定
- スピン状態
- 定量解析
- 精度 $< 0.1 \text{ \AA}$ の構造決定
- 分子振動

■ 角度分解光電子分光・回折

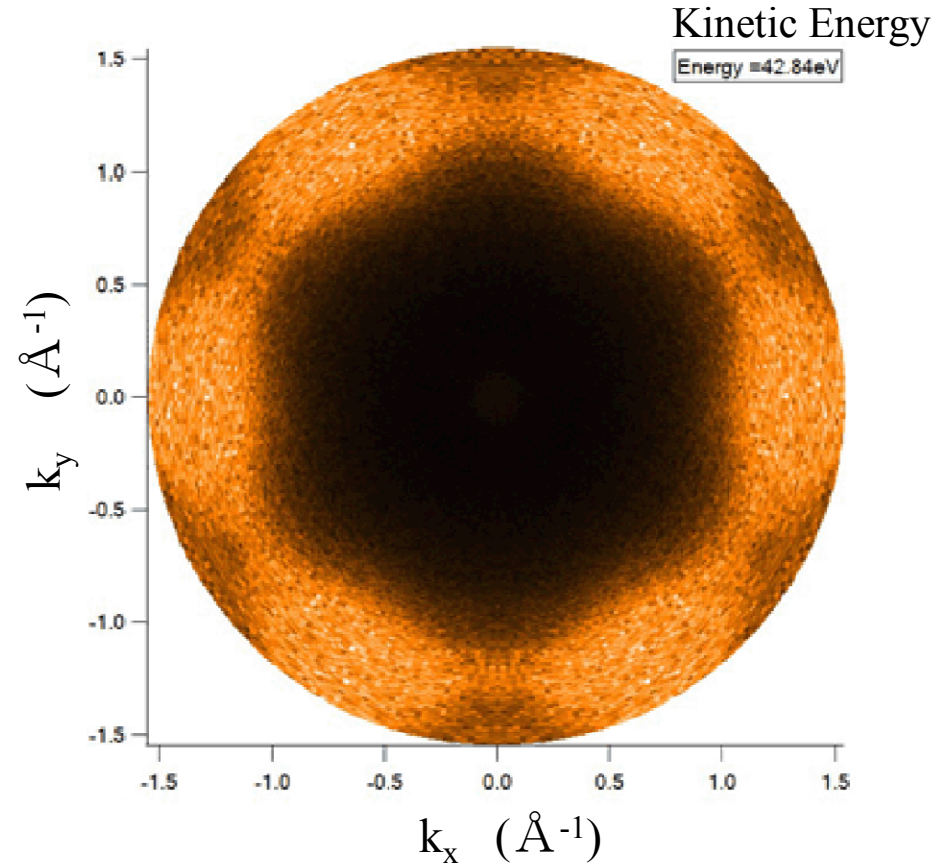
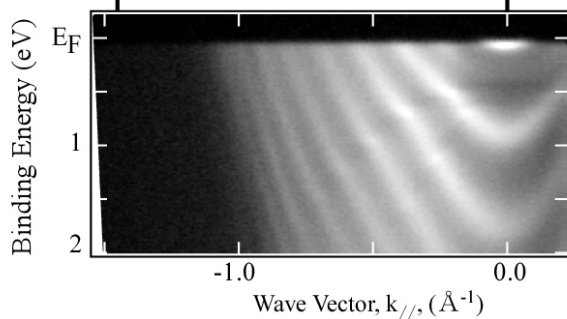
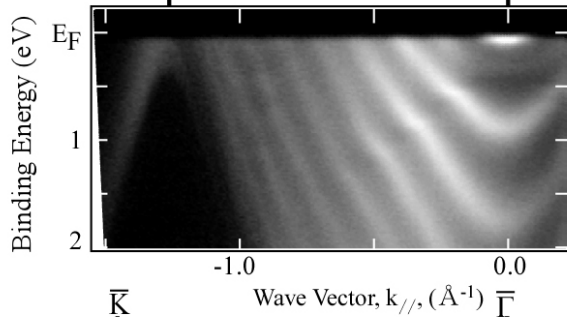
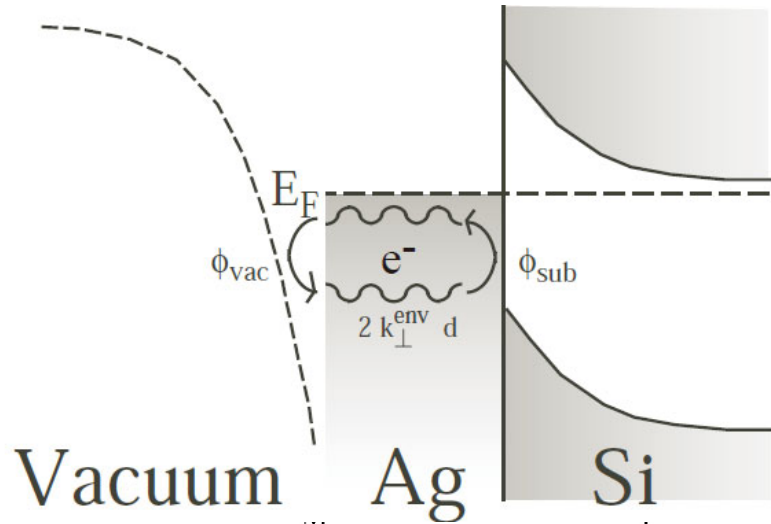
Si 2p: Si(111)



Co(0001) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -CO

T. Ramsvik *et al.*, Surf. Sci. **492**, 152 (2001).

Example: Quantum size effect 15ML-Ag(111) metal film on Si(111)



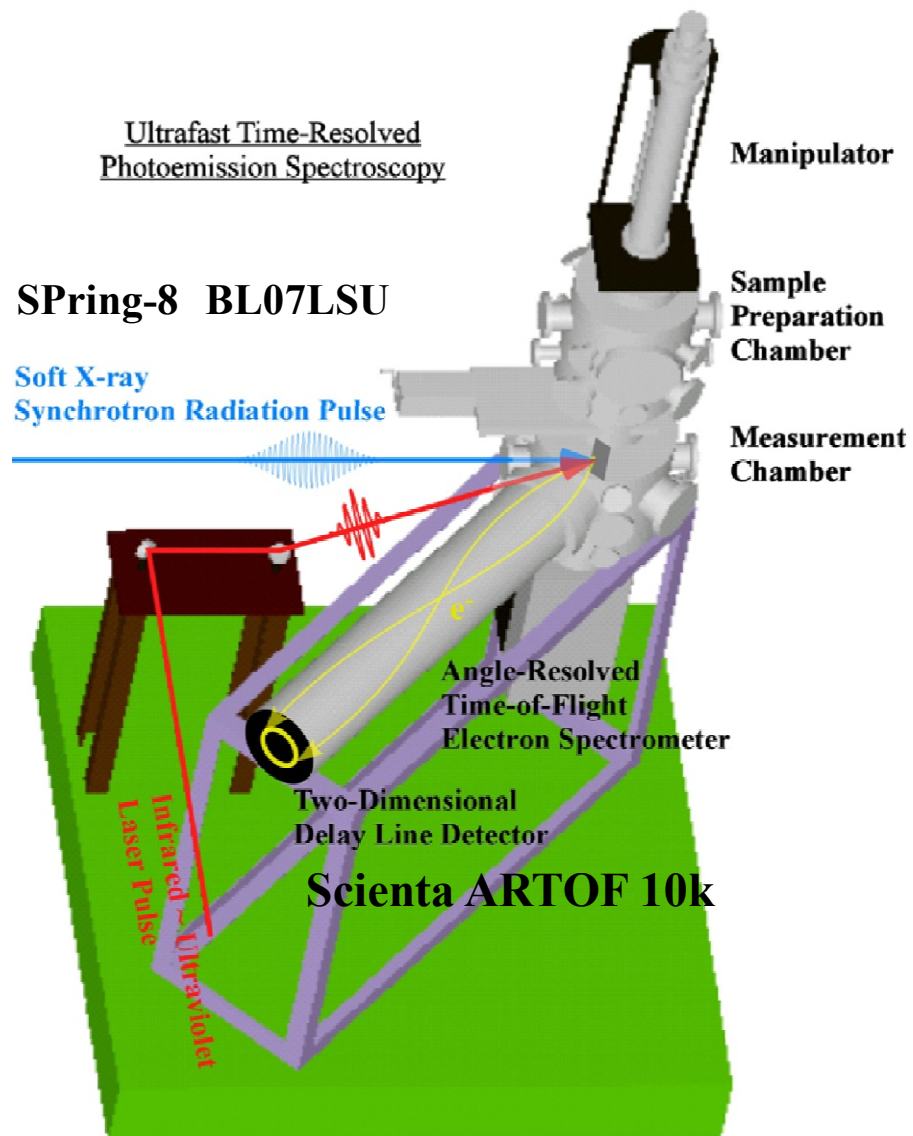
データ点の増大
 ≡ > 実験結果精度の向上

高分解能2次元光電子マッピングは当たり前

測定時間：8時間 + 3回対称操作

時間分解軟X線分光実験ステーション
TR-SX spectroscopy

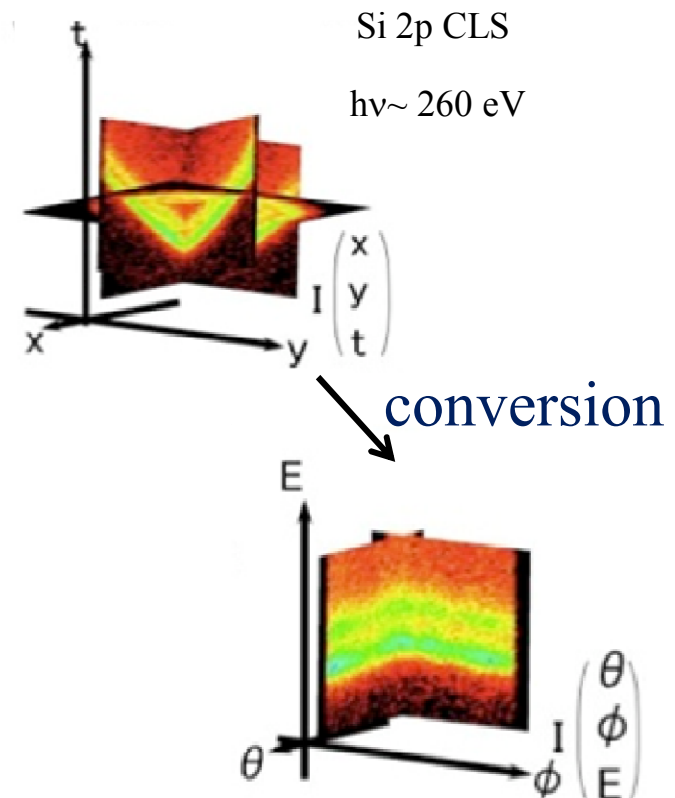
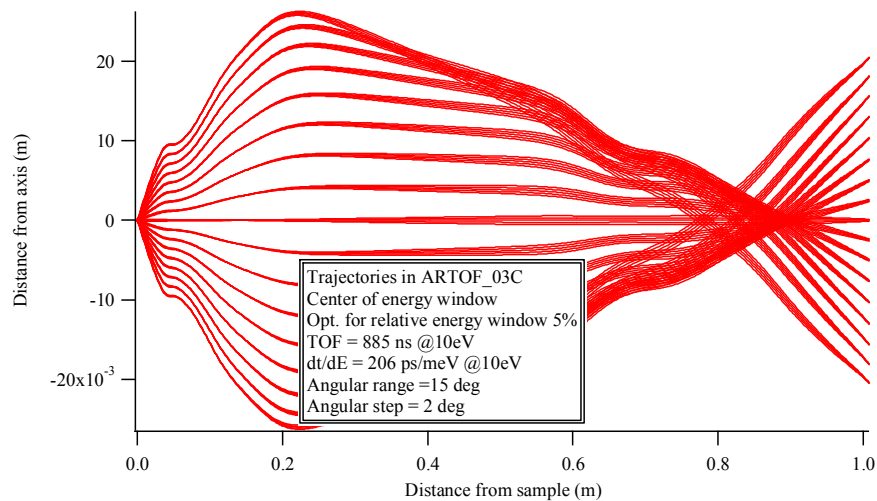
レーザー(ポンプ)-放射光(プローブ)時間分解光電子分光
フェムト秒時間分解レーザー光電子分光



時間分解高分解能光電子測定 (角度積分、2次元角度分解)を行うには、

- 高輝度軟X線ビームラインでの実験
- 蛍光スクリーンよりも高速なDLD検出器
- スリットレスにし、半球型に対して250倍のTransmissionの電子分析器
- パスエネルギーに依存しない高分解能電子分析器
- 検出器内の位置・時間差を分解能向上に
- 2次元光電子を一度に検出する電子分析器

飛行時間型角度分解電子分析器

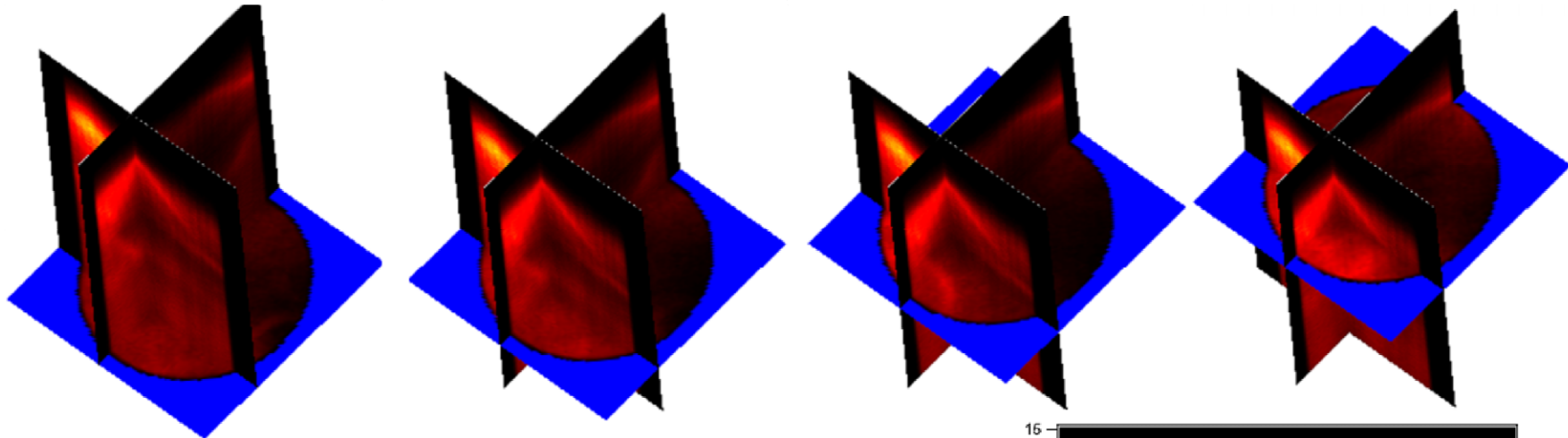


SPring-8 BL07LSU

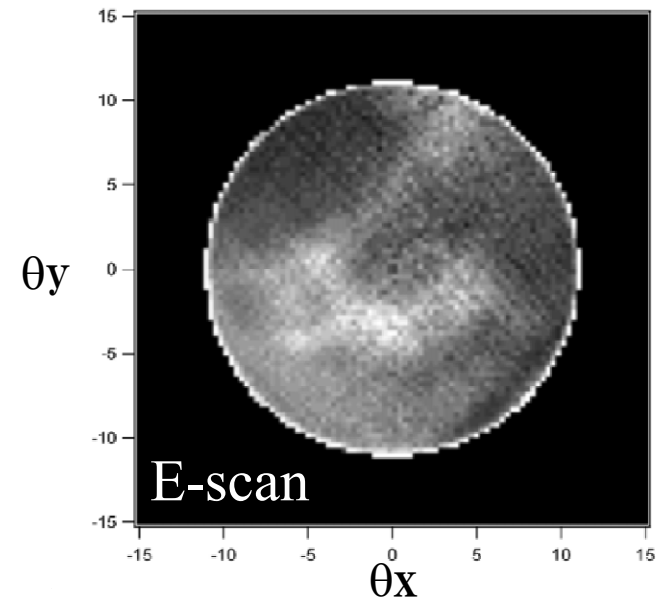
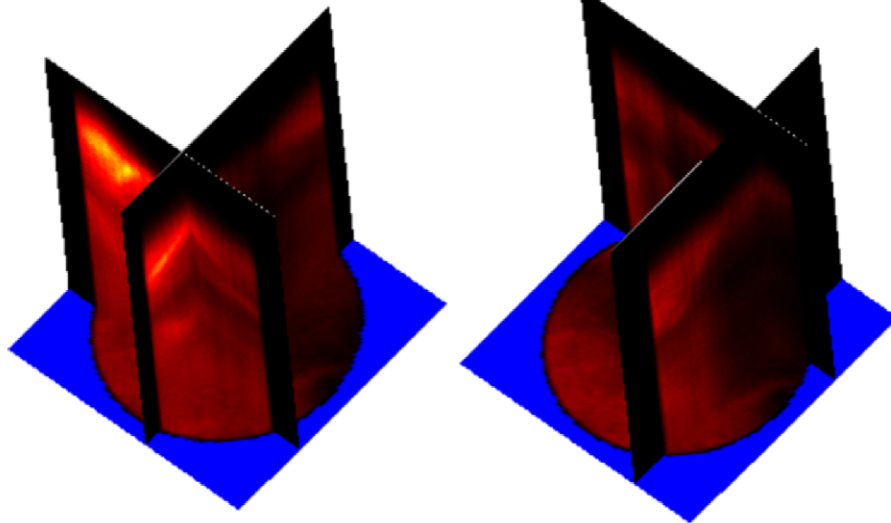
○ 2-D angle-resolved mapping **without** the sample rotation

θ_x , θ_y range= $\pm 12.5^\circ$
(θ_x , θ_y , Max. range= $\pm 15^\circ$)
Energy range = 17.5 eV

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

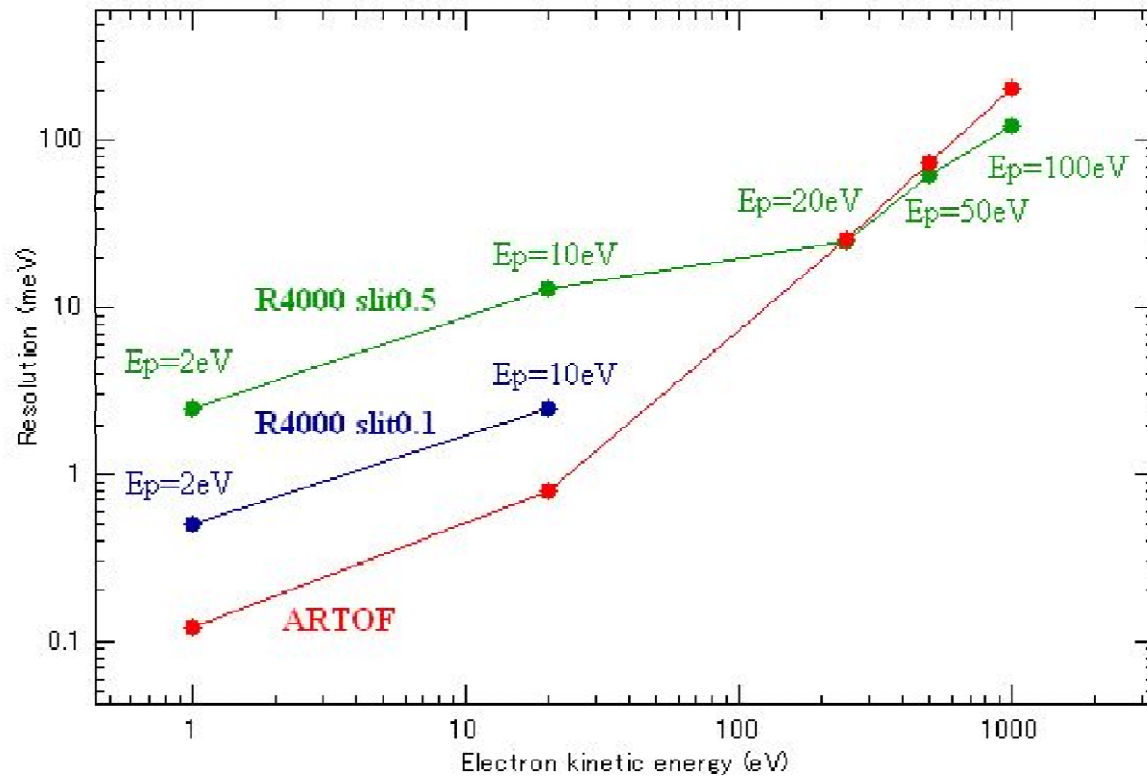


測定時間：6時間



Comparison with hemispherical type

IDEESS, BESSY
Cosmin Lupulescu (BESSY)

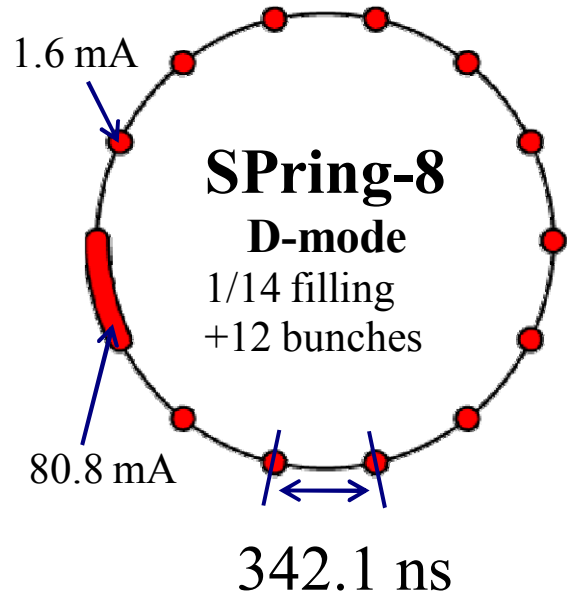


Comparison between the ARTOF and the hemispherical analyzer

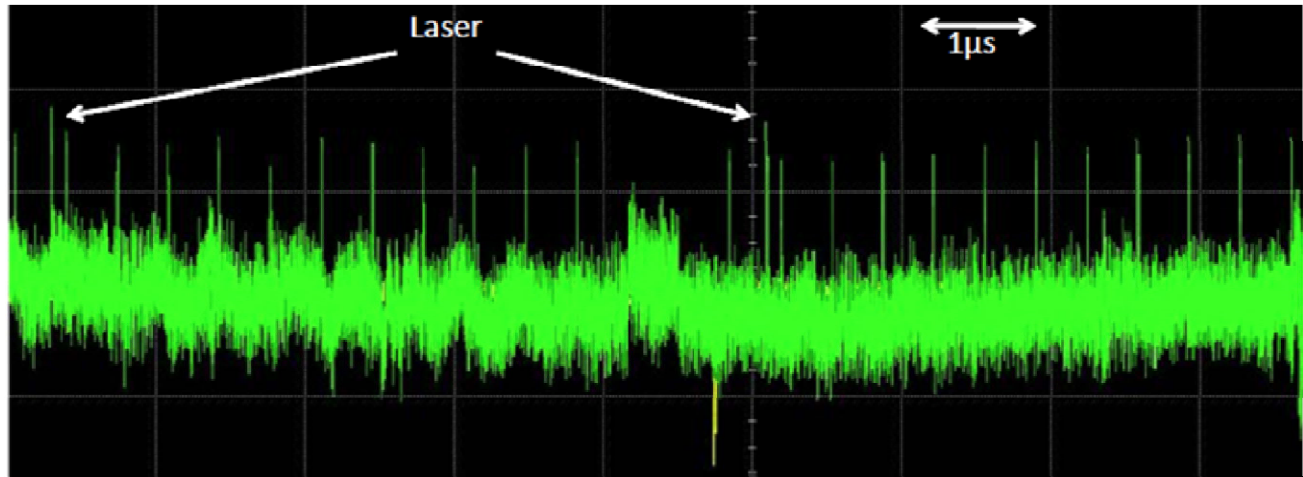
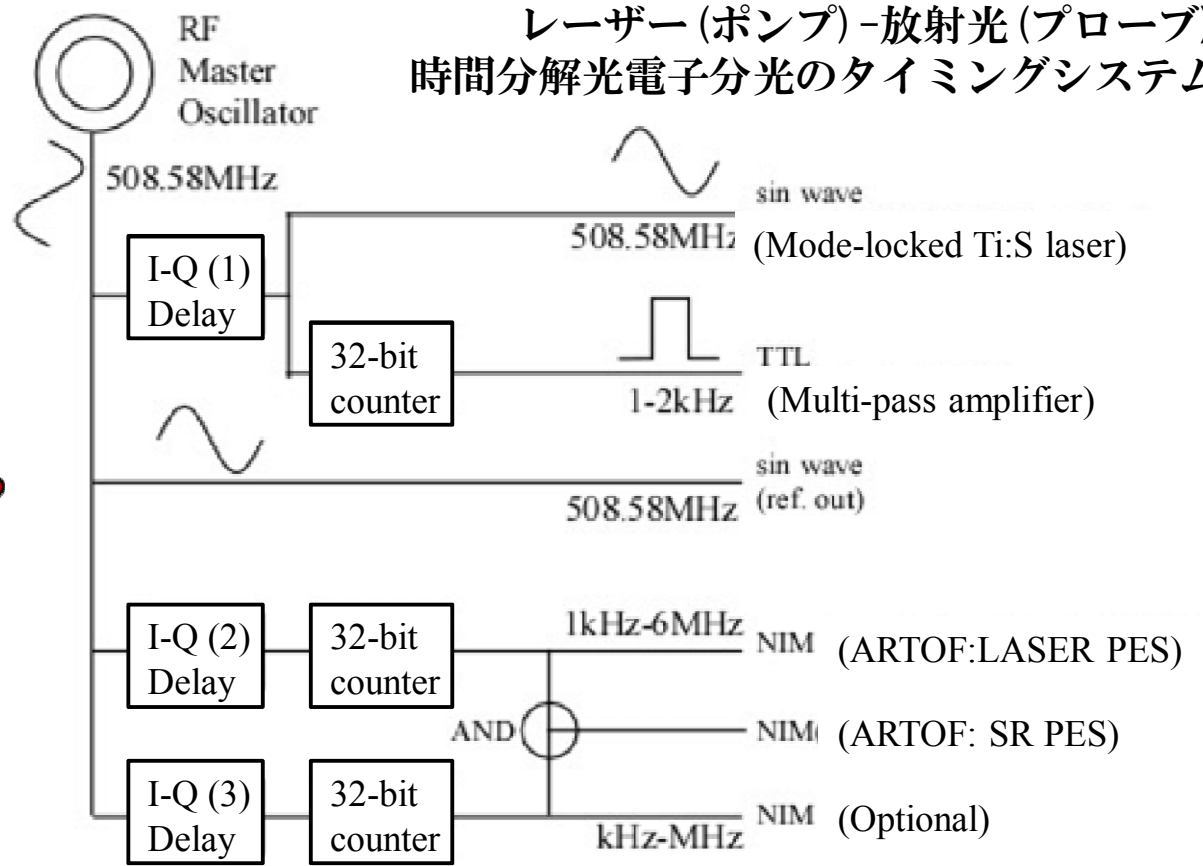
	time-of-flight analyzer (Scienta ARTOF 10k)	hemispherical analyzer (Scienta R4000)
energy resolution	150 μ eV	1.8 meV
energy resolving power	10000	1750 (for 0.2 mm slit)
angular resolution	0.08° (0.4mm sample diameter)	0.4° (1mm sample diameter)
slits	0 (total cone detection)	9
detector	MCP/delay-line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

SPring-8 BL07LSU

時間分解測定への展開



レーザー(ポンプ)-放射光(プローブ) 時間分解光電子分光のタイミングシステム

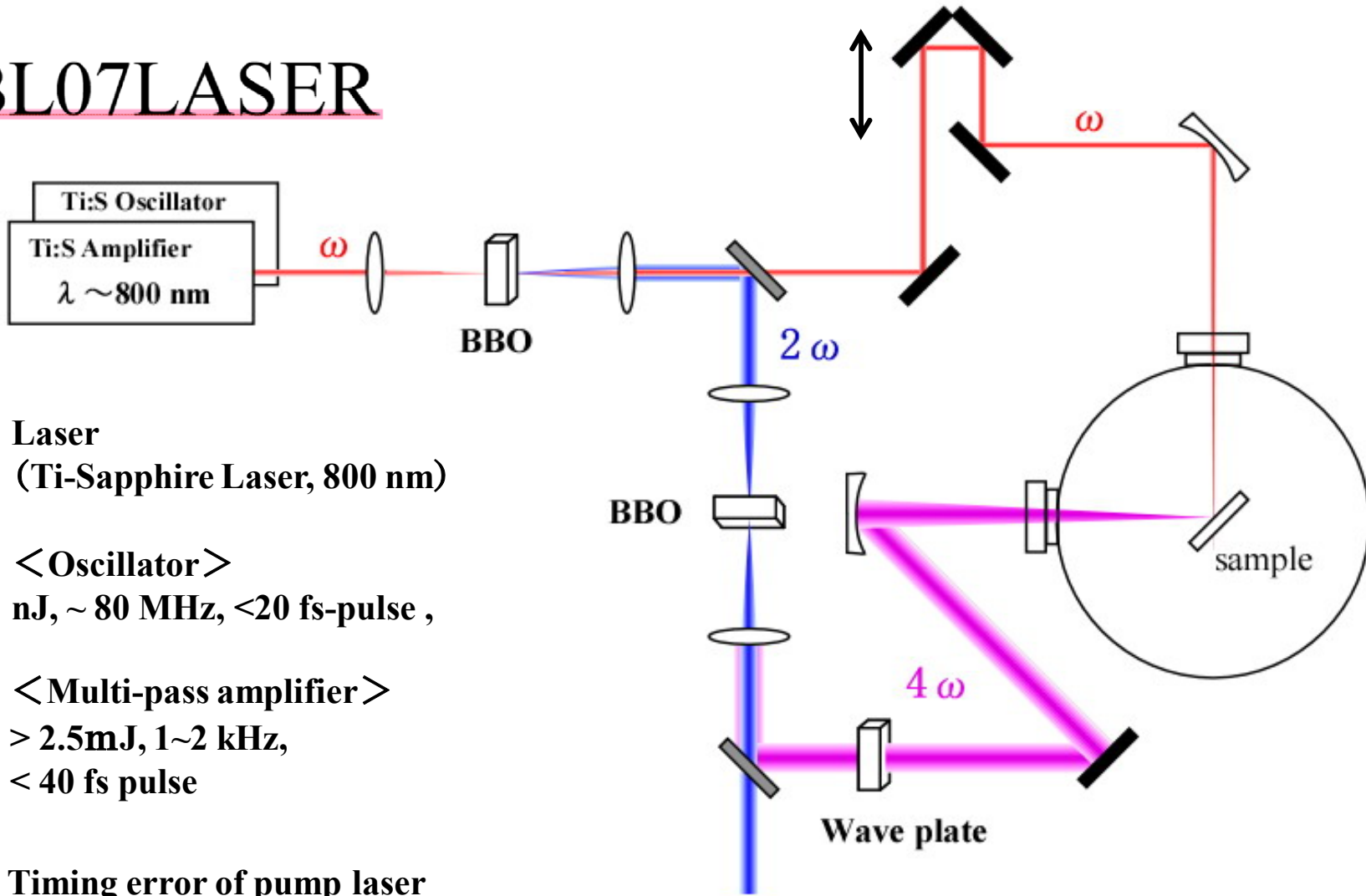


Timing control of pump laser and probe SR pulses:
~ 50 ps

SR pulse-width:
~ 50 ps

SPring-8 BL07LSU
時間分解測定への展開

BL07LASER



Laser
(Ti-Sapphire Laser, 800 nm)

<Oscillator>
nJ, ~ 80 MHz, <20 fs-pulse ,

<Multi-pass amplifier>
> 2.5mJ, 1~2 kHz,
< 40 fs pulse

Timing error of pump laser
and probe laser pulses: 0, in principle

時間分解軟X線分光実験ステーション
TR-SX spectroscopy

◆ 2次元飛行時間型電子分析器と用いた時間分解軟X線光電子分光測定システムが完成した。

➡ 半球型電子分析に比べて、250倍から625倍のtransmission

通常の放射光運転モード：数百MHzの光電子分光測定
 セベラルバンチモード：kHz~MHzの時間分解光電子分光測定

補償

➡ サンプル回転なしで全ブリルアンゾーンのバンド決定=>偏光依存性、時間分解測定へ

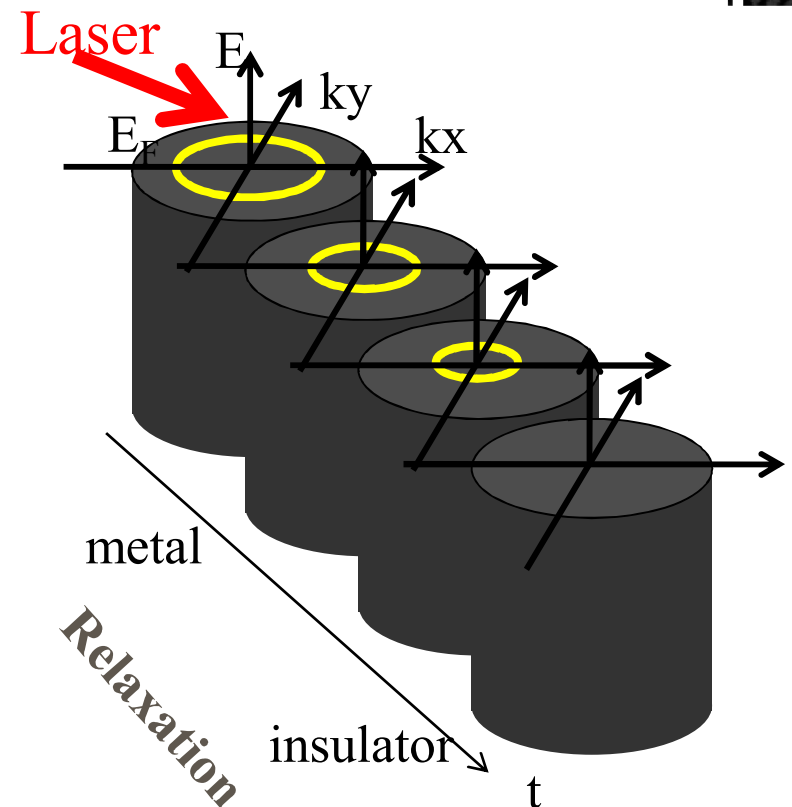
➡ 放射光-レーザー同期精度：約50ピコ秒
 (放射光パルス幅)

➡ フェムト秒パルスによるレーザー光電子分光測定にも対応

◆ 波数分解キャリアダイナミクスの研究

➡ 半導体表面上低次元金属系

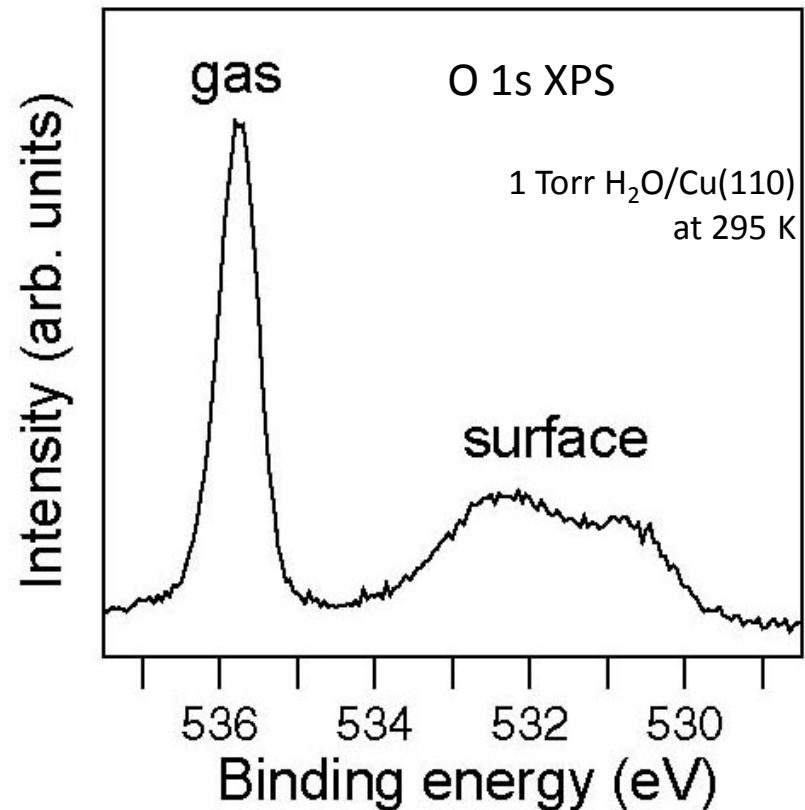
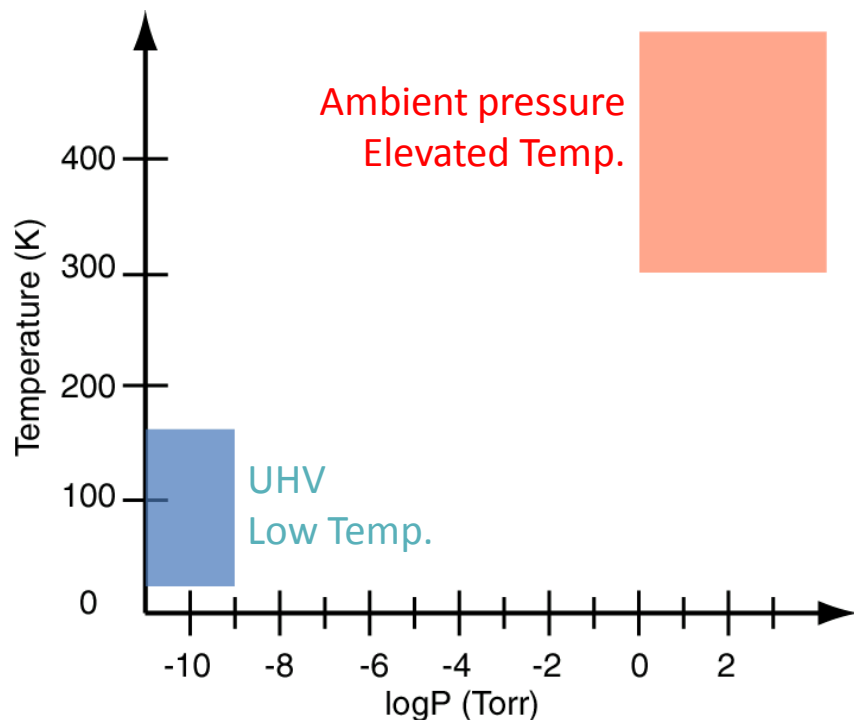
➡ 酸化物半導体表面



時間分解軟X線分光実験ステーション
TR-SX spectroscopy

光触媒系酸化物半導体表面のキャリアダイナミクス → 実際の触媒反応へ

大気圧光電子分光、そしてその時分割測定へ



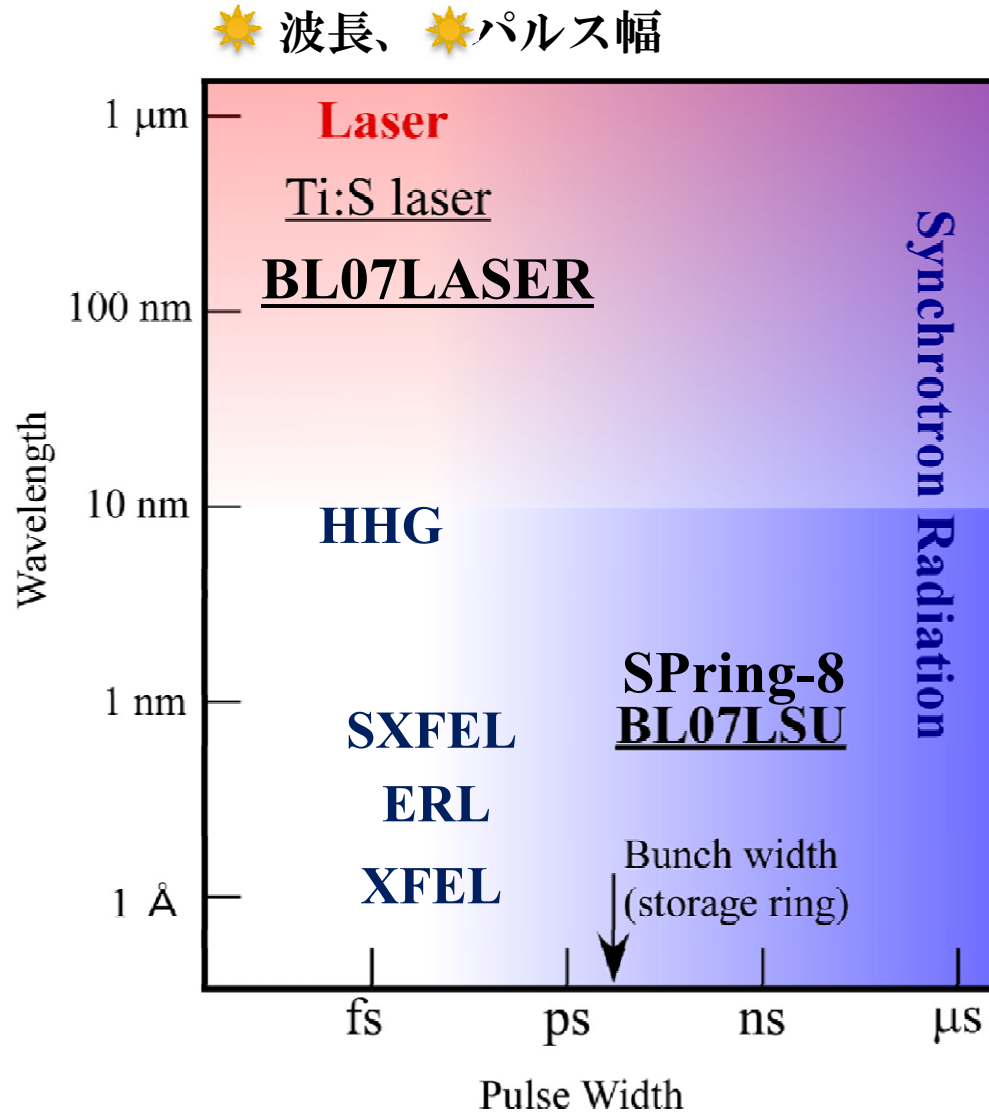
References on ALS BL11.0.2: D.F. Ogletree *et al.*, Rev. Sci. Instrum. 73 3872 (2002).

H. Bluhm *et al.*, J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. 150 86 (2006).

新光源による時間分解軟X線分光測定への展開

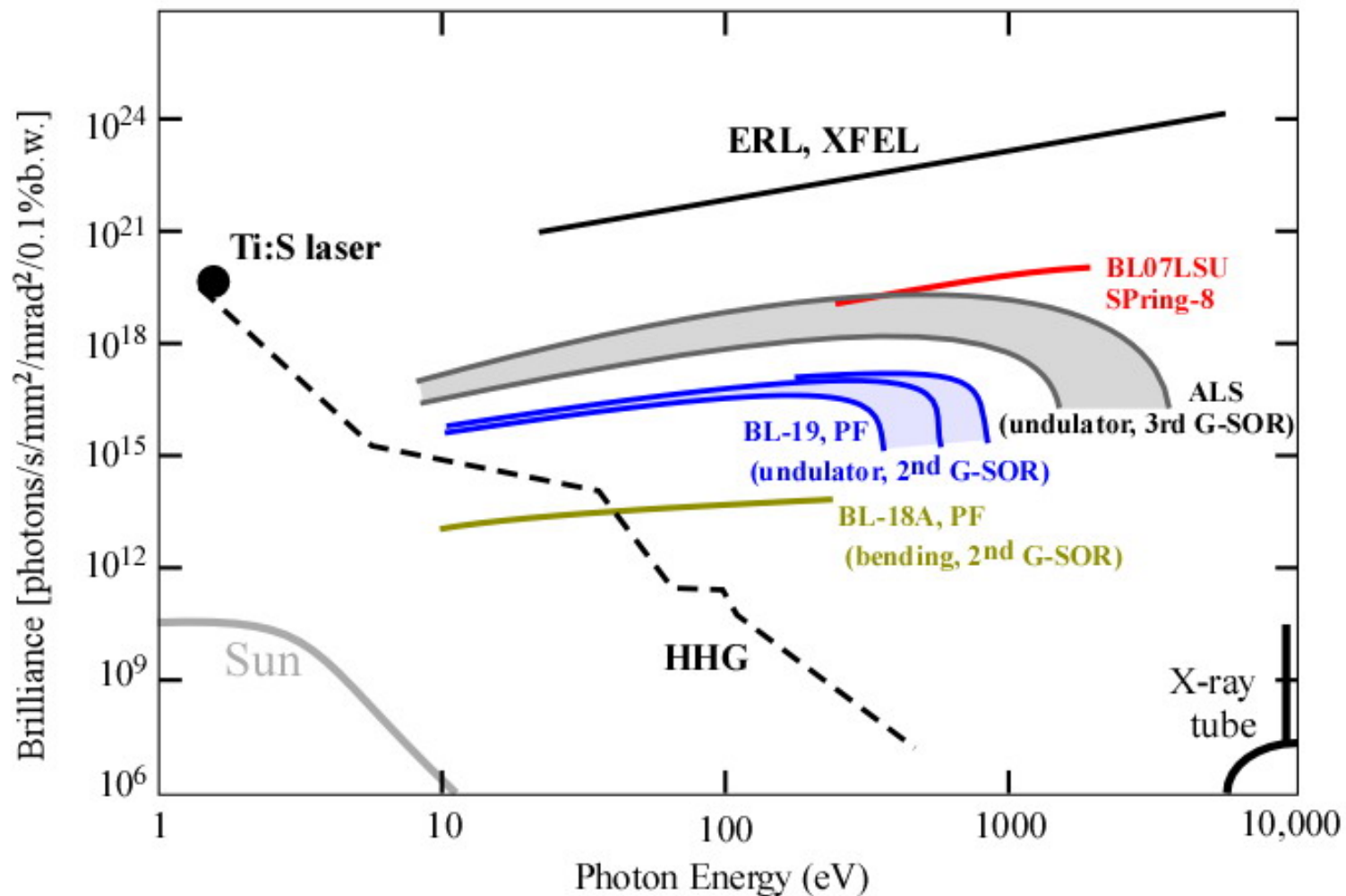
光源の選定

- ☀ 波長
- ☀ パルス幅
- ☀ 輝度
- ☀ ピーク輝度
- ☀ 繰返し周波数



新光源による時間分解軟X線分光測定への展開

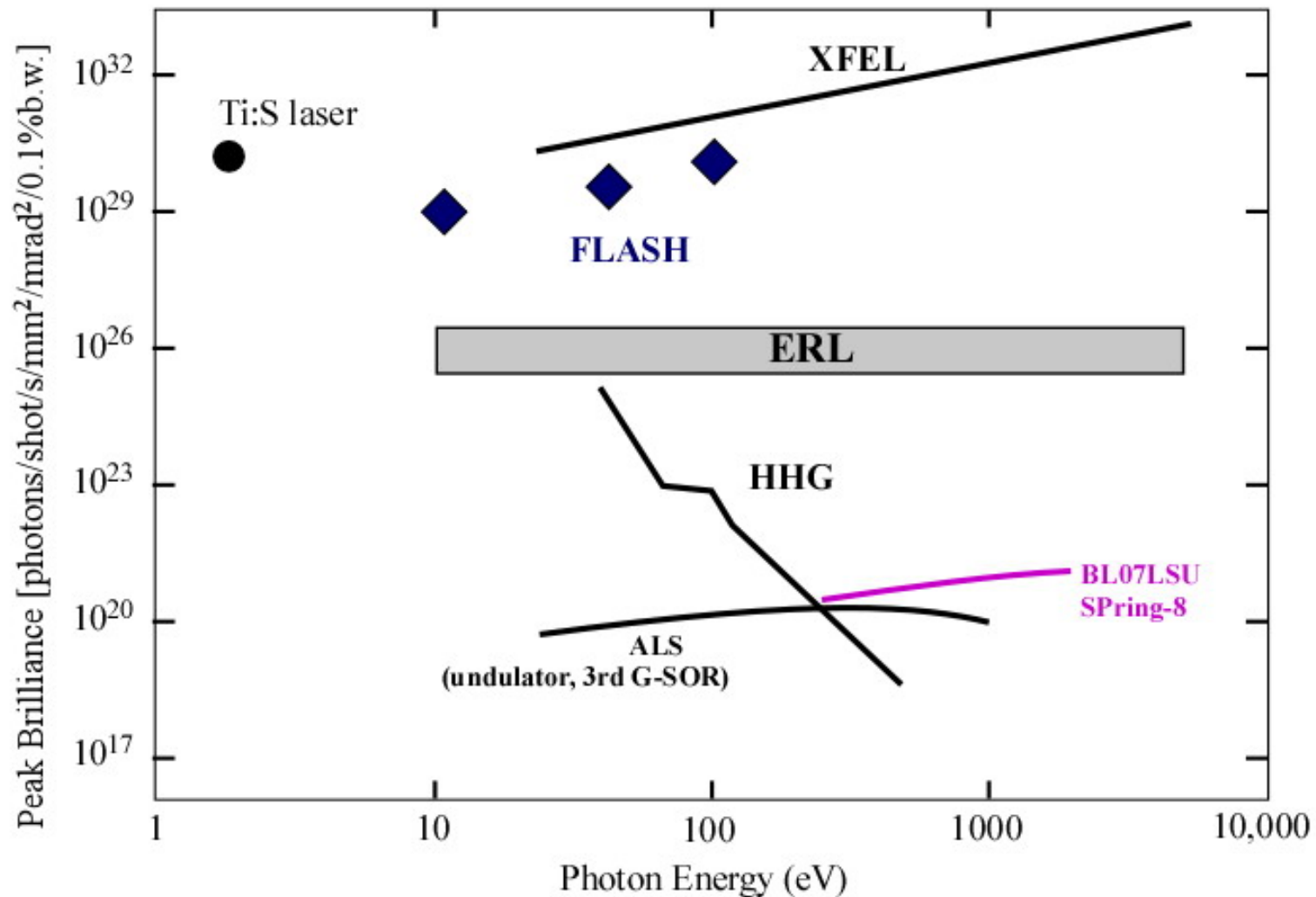
☀ 輝度



K. Tsuji, J. Unjuk, and R.V.Grieken-ed., *X-Ray Spectrometry: Recent Technological Advances* (Wiley, 2004)

新光源による時間分解軟X線分光測定への展開

☀ ピーク輝度



K. Tsuji, J. Unjuk, and R.V.Grieken-ed., *X-Ray Spectrometry: Recent Technological Advances* (Wiley, 2004)

XPS with FLASH

W(110)

$h\nu=118.5\text{eV}$

Pulse width: 30fs

Spot size: 395 mm x 274mm

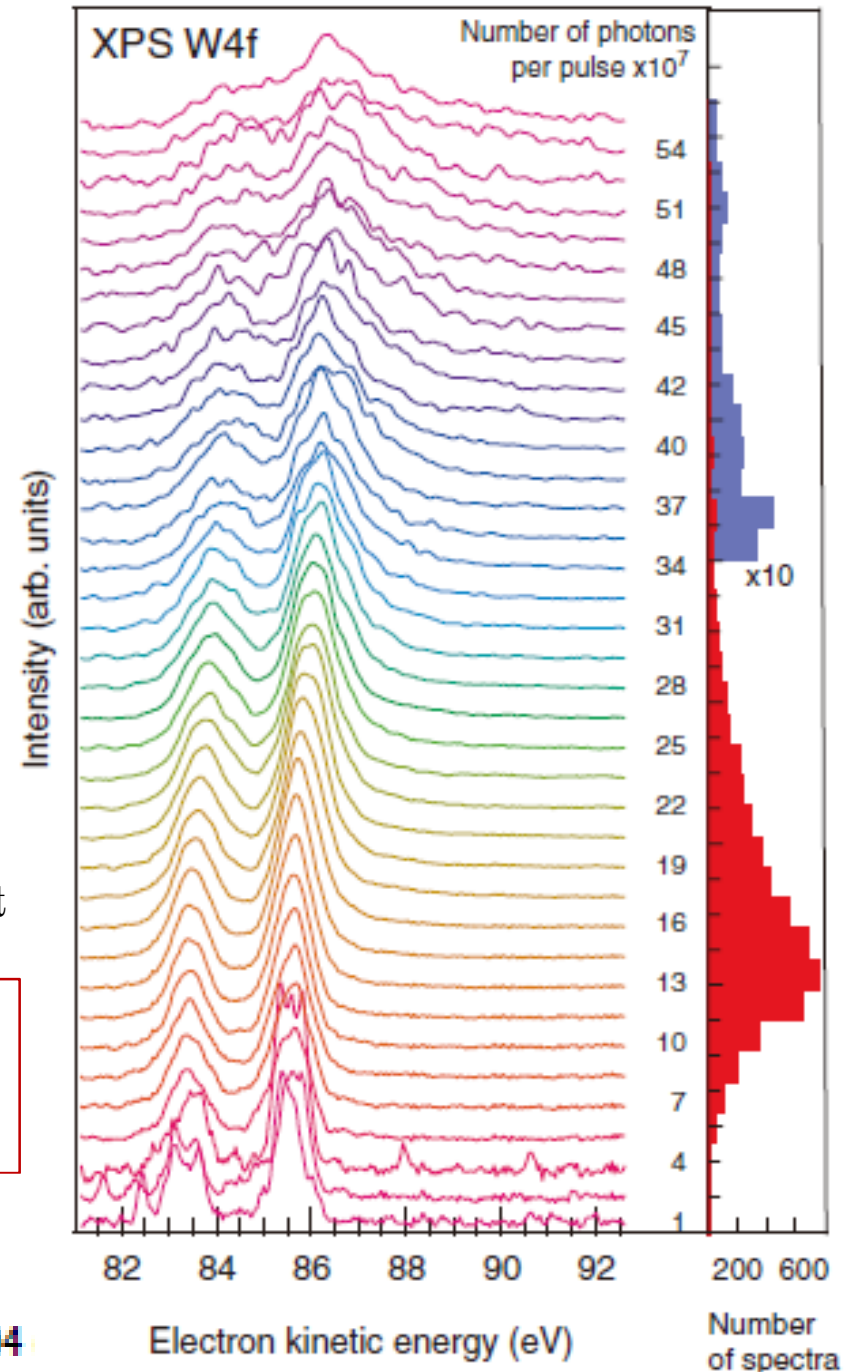
Frequency: 5Hz

Au mesh to detect portion of incoming photon
to calibrate flux

フェムト秒パルスでは $<10^8$ photon/s/shot
にしないと、スペクトルに影響がある。

SR光源約50ピコ秒パルス： 10^4 – 10^5 photon/s/shot

光電子分光測定として、現在のSR利用から
数ケタのピーク輝度の向上はあり。
しかし、それ以上はいらない。



✪ 繰返し周波数

電子分析器との相性

電子分析器： 電子分光器 + 電子検出器

<タイプA> 半円球型 + MCP-蛍光スクリーン-CCD

通常の光電子分光測定：連続光源

時間分解光電子分光測定：kHz

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)

<タイプB> 2次元角度分解飛行時間型 + DLD

通常の光電子分光測定：< 3MHz

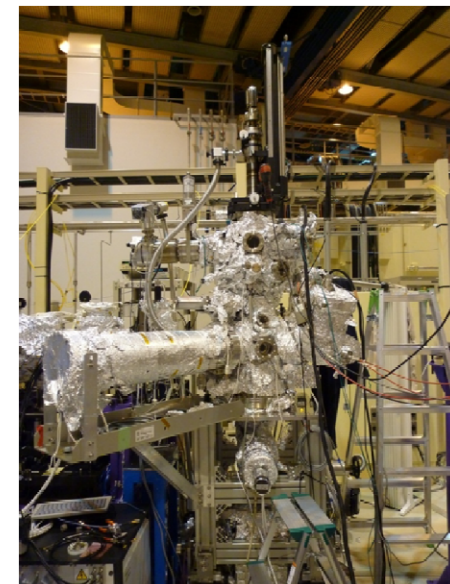
時間分解光電子分光測定：< 3MHz

DLD: 10-12.5 ns (80-100 MHz)

飛行時間(Scienta ARTOF 10k): 100 ns (1000 eV)

~ 3 μ s (1eV)

信号処理時間：数百ns (数MHz)



☀ 繰返し周波数

電子分析器との相性

電子分析器： 電子分光器 + 電子検出器

<タイプC> 半球型 + DLD

通常の光電子分光測定： <3MHz

80-100MHz (角度、エネルギーに対する時間補正)

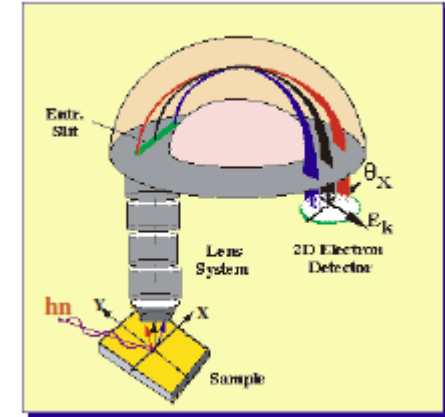
時間分解光電子分光測定： <3MHz

80-100 MHz (角度、エネルギーに対する時間補正)

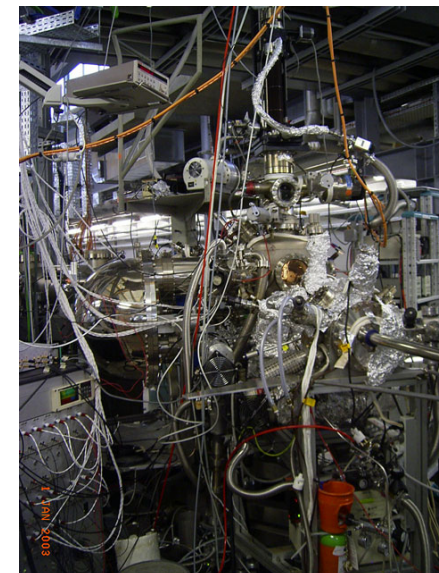
DLD: 10-12.5 ns (80-100 MHz)

飛行時間差(電子分析器内): 100 ns ~ 数 μ s

信号処理時間:



SOLEIL TEMPO beamline

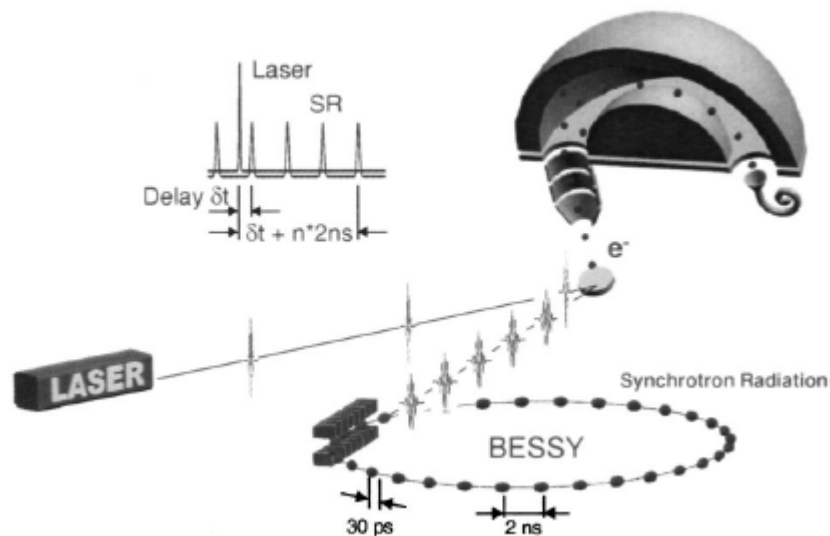


★ 繰返し周波数

電子分析器との相性

電子分析器： 電子分光器 + 電子検出器

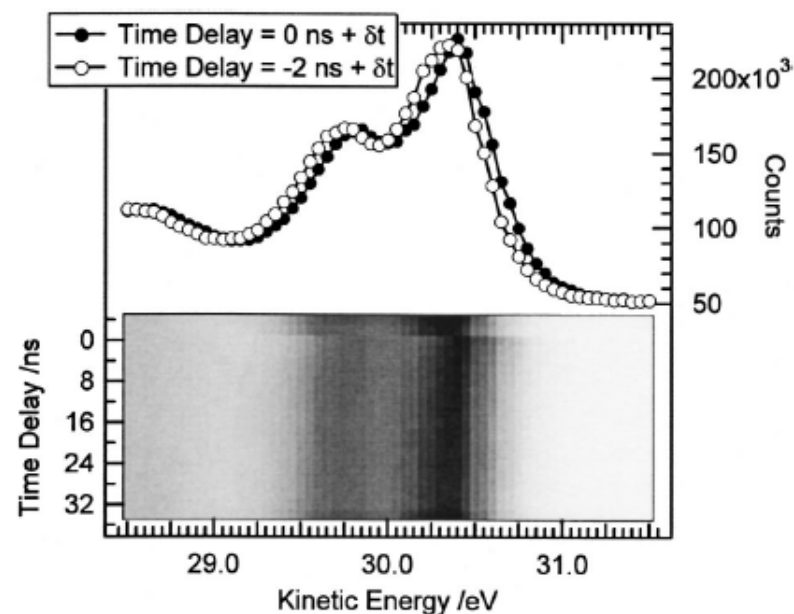
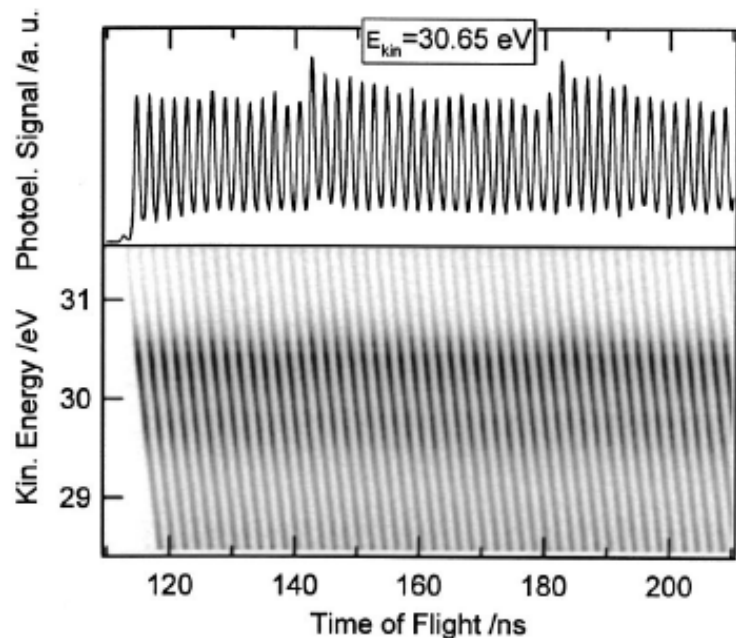
<タイプD> 半球型 + チャンネルトロン



通常の光電子分光測定：連続光源

時間分解光電子分光測定：GHz

定点電子エネルギーでの測定



新光源による時間分解軟X線分光測定への展開

ERLで時間分解光電子分光測定を行うということは、

時間分解能：100fs - 1ps (Ref. 100 ps)

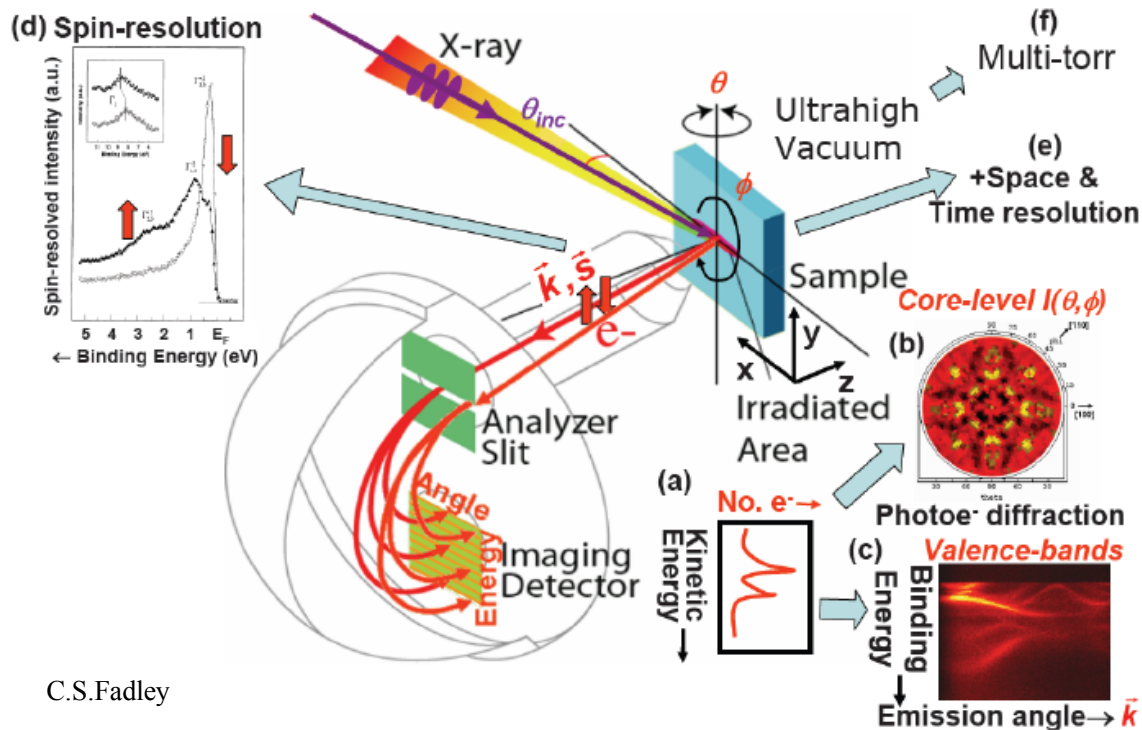
エネルギー分解能（原理）：40 meV- 4 meV (Ref. 0.04 meV)

繰返し周波数：GHz (1点角度、1点エネルギー)

80-100 MHz (補正後に1次元角度範囲、エネルギー範囲)

< 3MHz, 80-100 MHz (2次元角度範囲、エネルギー範囲)

ピーク輝度：第3世代光源よりも光電子強度を数桁あげることができる。



- 全種類の元素特定
- 化学種、化学サイトの特定
- 電子状態、電子構造決定
- スピン状態
- 定量解析
- 精度 <math>< 0.1 \text{ \AA}</math> の構造決定
- 分子振動

新光源による時間分解軟X線分光測定への展開

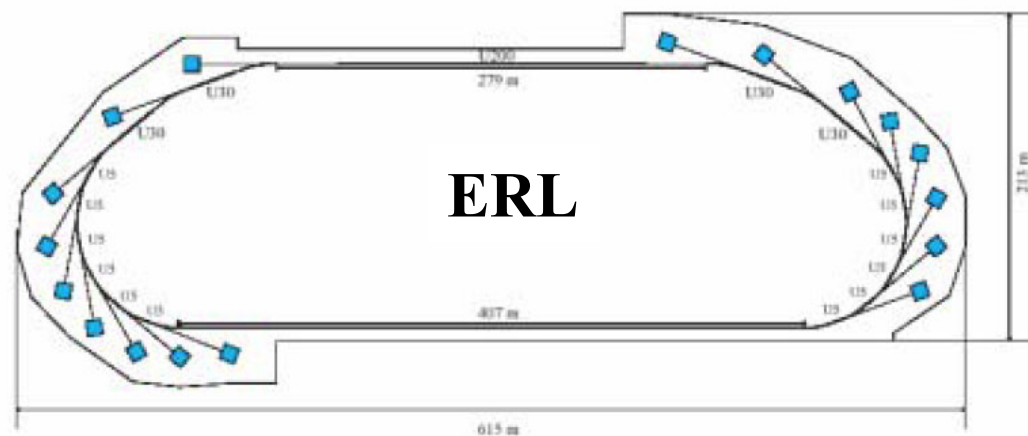
ERLで時間分解光電子分光測定を行うということは、

タイミング：ポンプパルスとプローブパルスのタイミング誤差は100fs以下でなくてはならない。

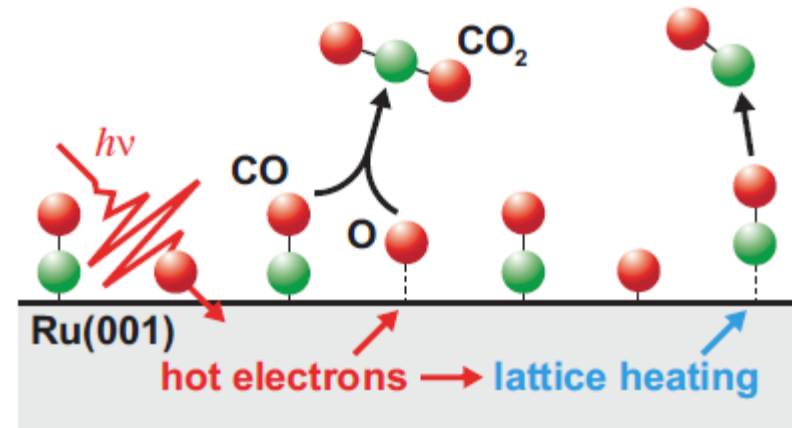
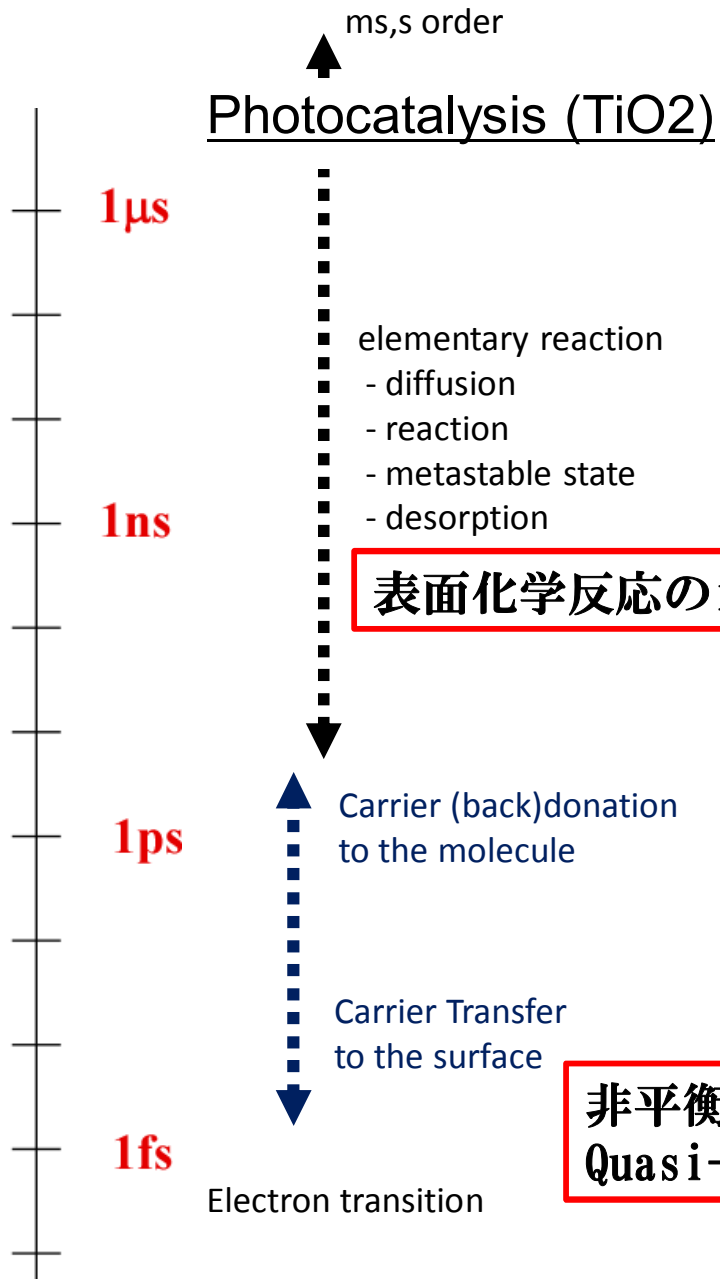
Couple use of two independent beamlines with the same electron bunch

同じ電子バンチから発生した2つの光の利用

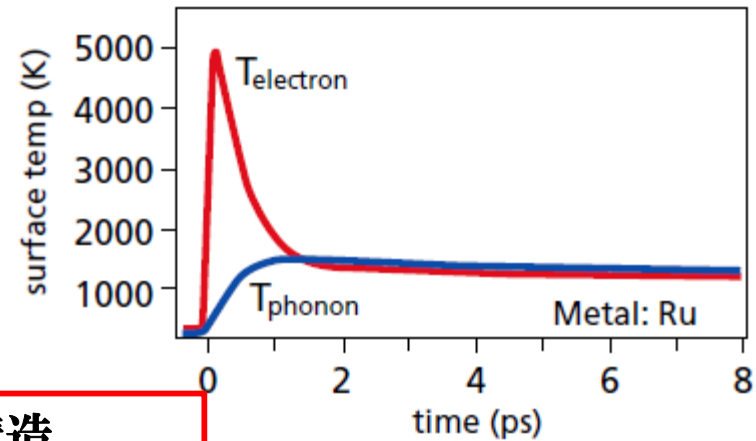
- アンジュレータビームライン#1：ポンプ光 (VIS~VUV)
- アンジュレータビームライン#2：プローブ光 (VUV~SX)



ERLで見えてくるTime Scale

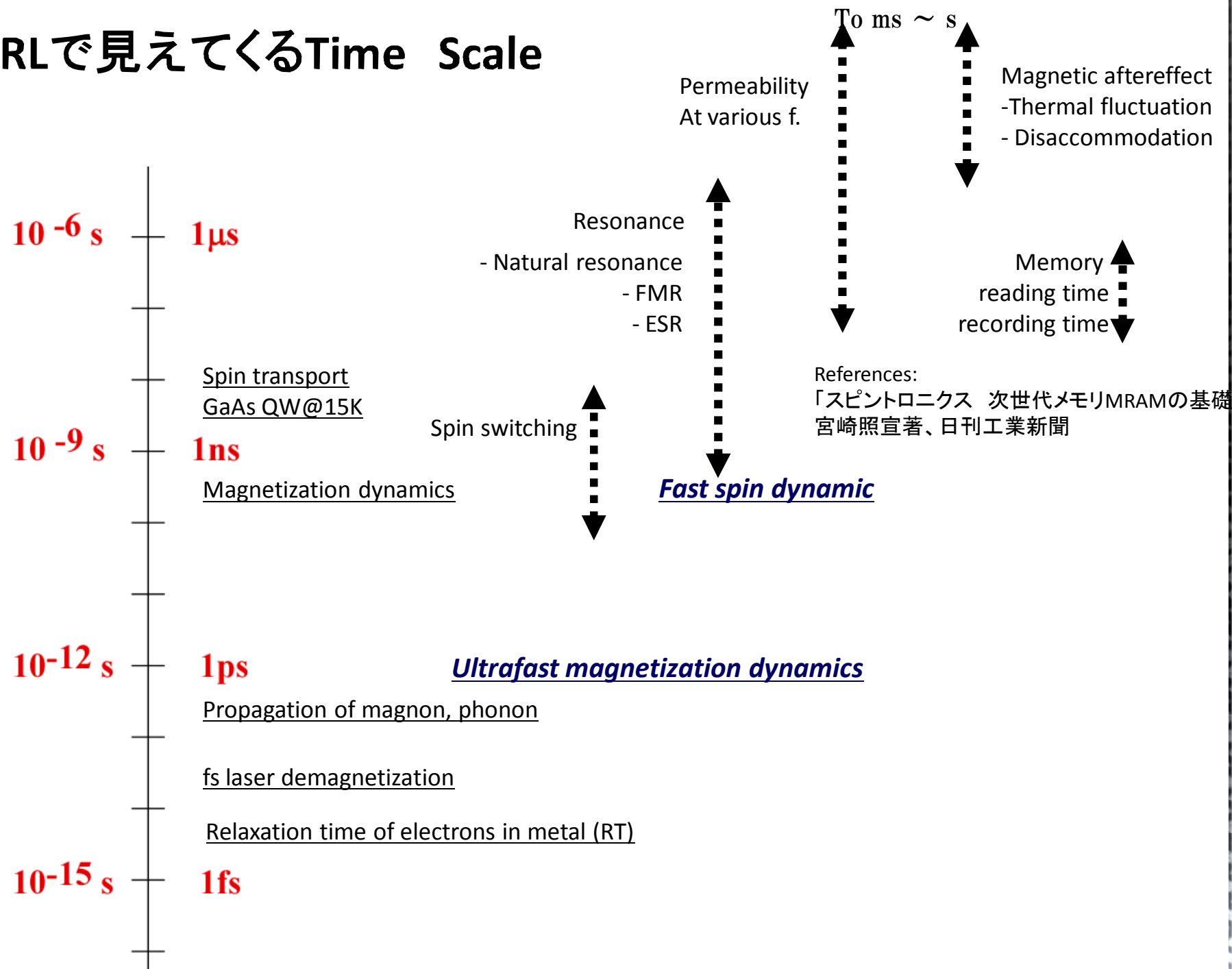


表面化学反応のin situ & real time 観測



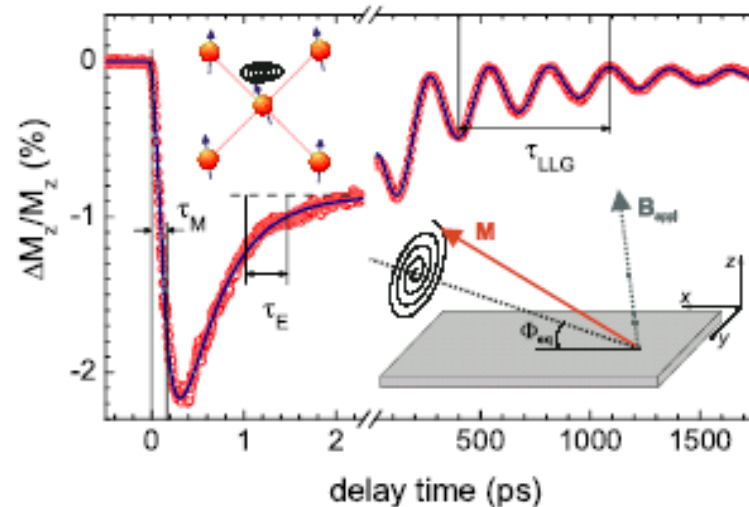
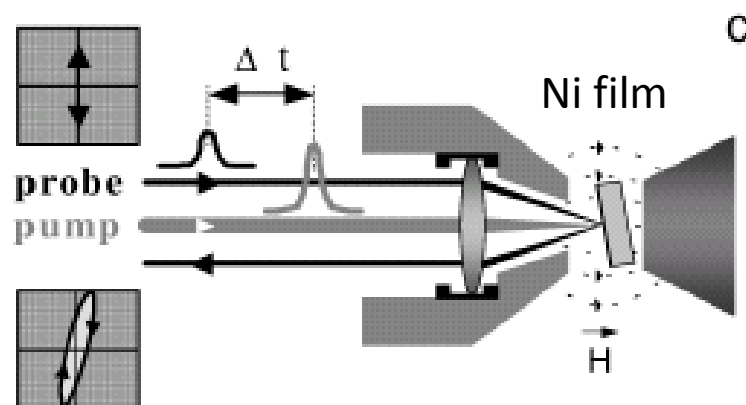
非平衡状態のバンド構造
Quasi-Fermi surface mapping

ERLで見えてくるTime Scale

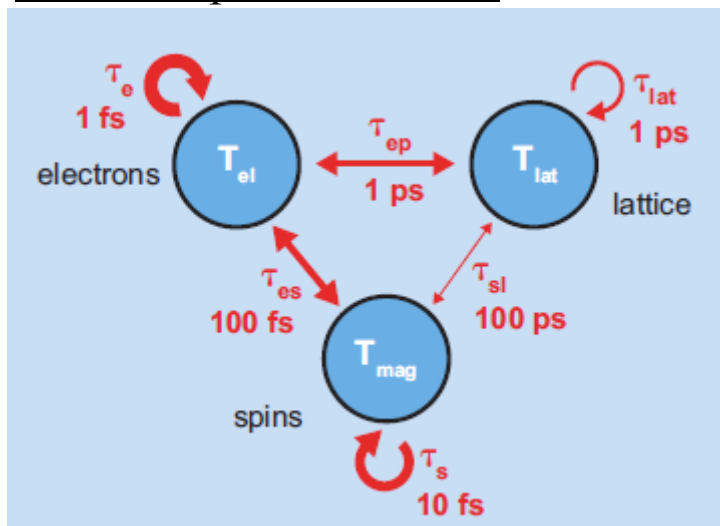


fs laser demagnetization

M. van Kampen *et al.*, Phys. Rev. Lett. **88**, 227201 (2002).



Three temperature model



Beaurepaire, E., Merle, J. C., Daunois, A., and Bigot, J. Y., Phys. Rev. Lett. 76, 4250-4253 (1996).

Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) equation:

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = \gamma\mu_0(\vec{M} \times \vec{H}) + \frac{\alpha}{M} \left(\vec{M} \times \frac{d\vec{M}}{dt} \right), \quad (1)$$

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_e + \mathcal{H}_s + \mathcal{H}_{ee} + \mathcal{H}_{si}, \quad (2)$$

$$\mathcal{H}_{si} = \frac{\lambda_{si}}{N} \sum_k \sum_{k'} \sum_j^{N_s} c_k^\dagger c_{k'} (s_{j,+} + s_{j,-}), \quad (3)$$

Summary

- ◆ 2次元角度分解光電子分光の時分割測定に適した電子分析器を紹介し、その開発状況を紹介した。
- ◆ 光電子分光はレーザー、XFEL、SOR、そしてERLなど様々な光源で測定できる。その中でERLではフェムト秒時間分解でのVUV-SX光電子分光測定において、その特性を活かし、新しいサイエンスの展開が期待される。
- ◆ 軟X線を利用した分光として、吸収（NEXAFS、EXAFSなど）、発光（RIXSなど）、光磁気相互作用（MCD,MLD,軟X線Kerr効果）など様々なものが存在し、その時分割測定においてもERLは強力な光源となる。

東京大学物性研究所の教員公募（准教授）

本学が第3世代放射光施設SPring-8（兵庫県佐用郡佐用町）に整備したビームラインBL07LSUにて軟X線領域（250eV-2keV）の高輝度放射光を利用して物性研究を精力的に進めると共に、現有スタッフと協力して共同利用実験の支援を行い、新しい研究分野を開拓することに意欲ある若手研究者を希望する。

公募締切：7月19日（予定）
詳細は近日公開の公募をご覧ください。