

# 放射光とレーザーの組み合わせによる固体表面研究と将来への試み

鎌田雅夫（佐賀大）、東 純平（京大院理）

## 1. はじめに

放射光とレーザーは、ほぼ半世紀前に産声を上げて以後、共に優れた光源として多くの研究分野で利用されている。この両者を組み合わせた実験は、1980年に V. Saile<sup>1)</sup>によって初めて行われたが、その後は限られた人々が試行錯誤を繰り返す段階が続き、本格的に利用研究ができるようになったのは最近になってからであり、両者の組み合わせによる新しい分光法や興味深い研究例が報告されるようになってきた。一般に固体・表面での放射光とレーザーの組み合わせ実験は、1)放射光が作用した状態をレーザーでプローブする、2)レーザーが作用した状態を放射光でプローブする、3)両者を同時に作用させる、の3通りがあり、今後大きな発展を遂げるものと思われる(表1)<sup>2)</sup>。

## 2. 時間分解光電子分光法

レーザーと放射光の繰り返し周波数を同じにして、互いの時間差を変える、いわゆるレーザーポンプ・放射光プローブの方法を使えば、測定機器の応答時間とは無関係で、かつ S/N 比の良い時間分解光電子データを得ることができる。この方法では放射光とレーザーのパルス幅と繰り返し周波数によって測定可能時間領域に制限が生じ、図1に示した分子研UVSORBL6A2方式では1.5-11 nsが測定可能範囲である。他施設では、放射光のパルス幅が40 psのところもあり、シングルバンチの周回時間の大きさが利用できれば、40 ps - 5 μsの領域での時間分解光電子分光が現時点で原理的には可能である。

一方、μsよりも遅い時間領域での時間分解光電子分光は、放射光の周回時間による制限が邪魔になり、かつ光電子検出器の応答時間や計測装置の時定数が影響するなどの問題が生じるので、却って測定が難しいが、図2に示したように、中繰り返しのレーザーシステムを用いれば測定が可能である。

## 3. 測定例

100eV程度の放射光による内殻光電子分光法は、試料の表面感度が高く、かつ元素選択性に優れている。これとレーザーを組み合わせた Surface Photo-Voltage (SPV)の測定原理図を図3に示す。半導体表面をレーザーで光励起すると励起電子と正孔が生成されるが、それらは表面空間電荷層でのエネルギーバンドの曲がりのために別々の領域に移動する。この電荷分離によって新たな電場が表面層に発生し、バンドの曲がり量が減少する。このエネルギー変化は内殻光電子の運動エネルギー変化を測定することで容易に測定できる。図4にCs/GaAs(100)の例を示す。内殻準位が異なっても同じようにシフトしていることが分かる。

Marsiらは Super-ACOの自由電子レーザーと放射光のポンプ・プローブ方式でSiのSPV効

果の時間変化を測定している<sup>3)</sup>。我々は、上記システムを用いて、p-GaAs(100)の場合のSPV効果を測定し<sup>4)</sup>、 $\mu s$ 領域では著しい温度依存性を示すこと(図5)やns領域では大部分が遅い成分であり、速い成分は表面状態に大きく依存すること(図6)などを見出し、表面層におけるキャリアーの移動・再結合過程に直接トンネル過程と熱的過程が存在することなどを明らかにした。

#### 4. 将来への試み

最近の第3世代光源の高輝度性や第4世代光源の提案によって、上記の組み合わせ以外に、放射光が作用した状態を放射光でプローブする放射光・放射光の組み合わせの可能性が出てきた。またレーザー高調波による軟X線と可視レーザーによるレーザー・レーザーの組み合わせによる内殻分光も有望であり、我々もフェムト秒領域の内殻分光に向けた試みを行っている。将来超短パルスの放射光やレーザー高調波あるいはERL、SASEなどが利用出来て、フェムト秒レーザーとの組み合わせが実現すれば、フェムト秒領域の超高速現象の研究が飛躍的に進むことが期待される。

#### 参考文献

- 1) V. Saile: Appl. Optics 19, 4115 (1980).
- 2) 極限状態を見る放射光アナリシス(日本分光学会、測定法シリーズ 40, 2002、pp.49-58)。
- 3) M. Marsi, M. E. Couprie, L. Nahon, D. Garzella, T. Hara, R. Bakker, M. Billardon, A. Delboulbe, G. Indlekofer, and A. Taleb-Ibrahimi: Appl. Phys. Lett. 70, 895 (1997).
- 4) S. Tanaka, S. D. More, J. Murakami, M. Itoh, Y. Fujii, and M. Kamada: Phys. Rev. B64, 155308-1-155308-6 (2001).

#### 表1. 放射光とレーザーの組み合わせ実験で期待されるもの

##### 1) 放射光作用、レーザープローブ分光

- a) 内殻励起状態と物性の解明
- b) 内殻励起状態の脱励起
- c) 放射光励起光化学反応
- d) 放射光刺激脱離、欠陥生成

##### 2) レーザー作用、放射光プローブ

- a) 光誘起現象、構造相転移、色相転移、磁気相転移
- b) 過渡的な光誘起現象、光化学反応、光誘起電荷移動
- c) 価電子緩和励起状態、高密度励起状態、
- d) 光プロセス、レーザーアブレーション、成膜過程

##### 3) 放射光とレーザーの同時励起

- a) 2光子分光法の新たな展開(共鳴効果、実レベル励起、内殻準位)
- b) 多電子遷移過程、サテライト解明、物性評価
- c) 非線形効果、パラメトリック効果
- d) カスケード過程、中間状態分光

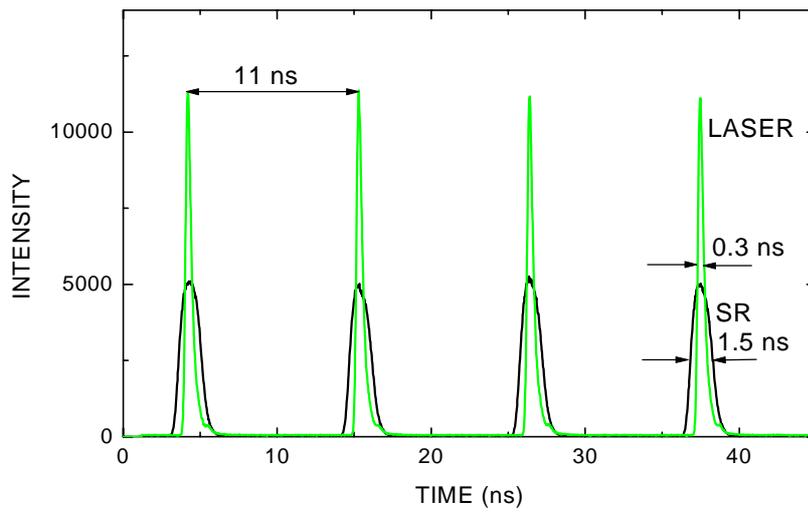


図 1 : UVSOR における放射光とレーザー(Nd:YAG)の時間構造

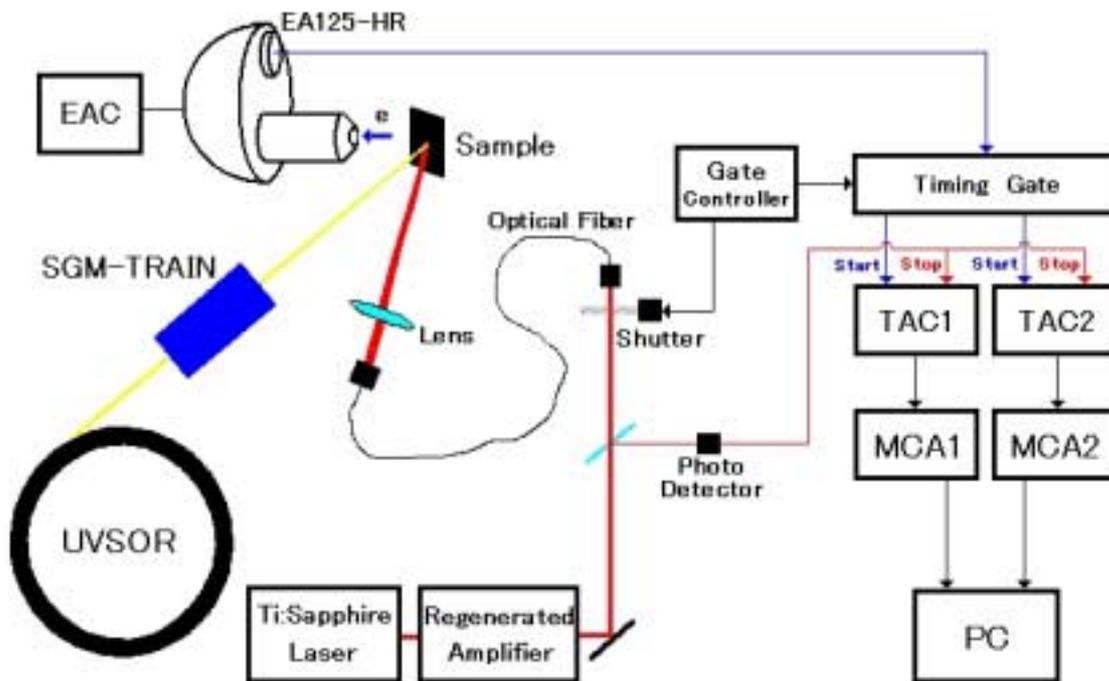


図 2 : UVSOR における  $\mu$  s 領域の時間分解光電子分光システム

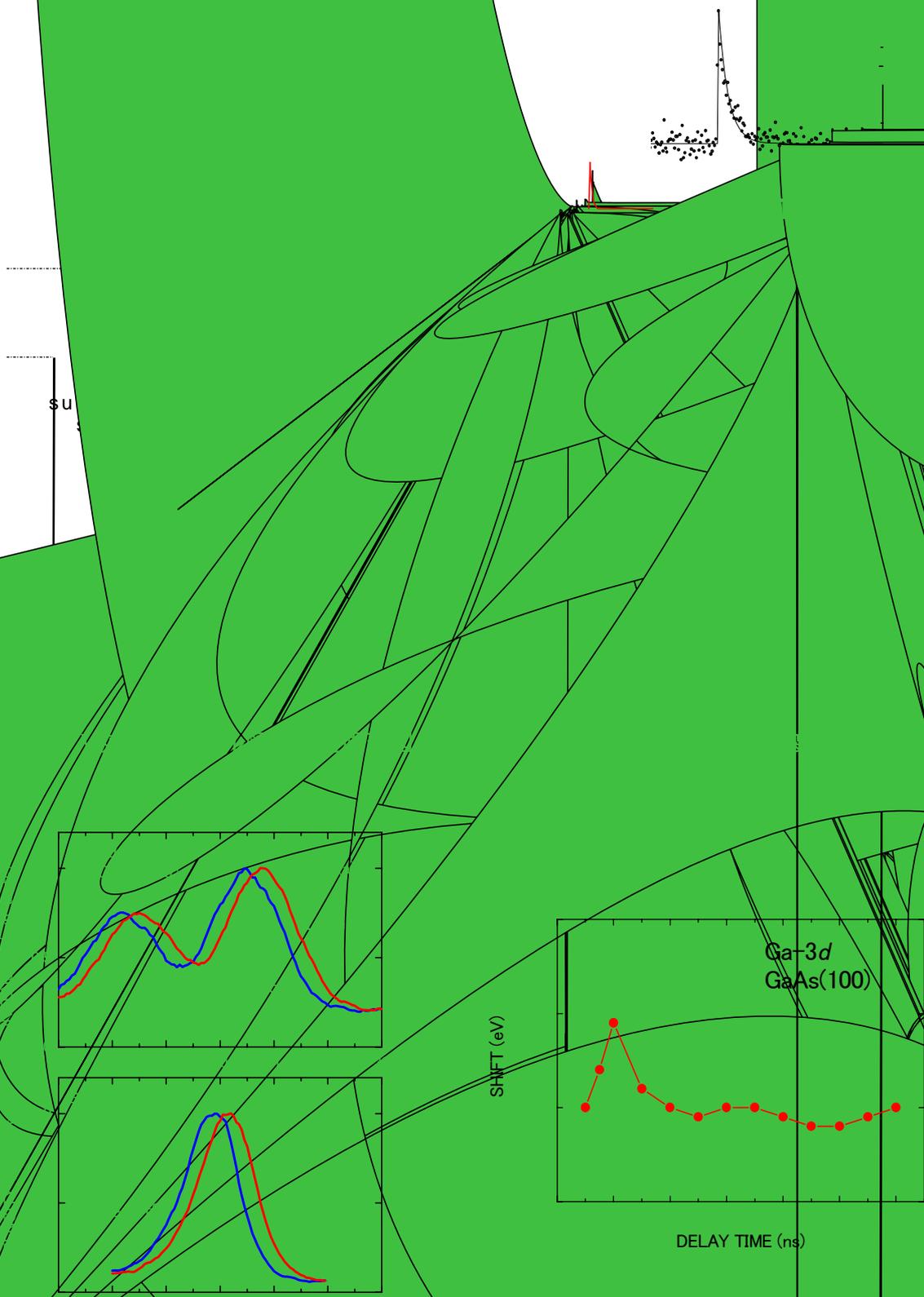


図6：SPV効果の ns 時間変化