

放射光 X 線パルスを用いた GaAs ピコ秒格子歪の時間分解測定

関西学院大学大学院理工学研究科

物理学専攻 寺内暉・高橋功研究室 山崎和広

単結晶の格子歪は X 線回折法によって詳細に調べることができる。一方、強く光励起された半導体結晶において、格子に膨張や圧縮を生じることが知られているが、その応答時間や緩和ダイナミクスについての情報は少ない。パルス的に光励起された場合の結晶格子のダイナミクスを X 線回折で調べるには、高輝度の X 線が必要となるためである。近年、大型放射光施設で大強度のパルス X 線光源が利用できるようになった。そこで本研究ではフェムト秒レーザーで励起した半導体結晶を、数十ピコ秒のパルス幅を持つ放射光を用いた X 線回折法によって調べる手法、すなわち、レーザーポンプ・放射光プローブ法により、格子歪の時間発展を直接観測し、光励起による過渡的な格子歪がどのように誘起され緩和するかを調べた。

本研究における実験は、放射光と時間同期させたレーザーシステムを備える SPring-8 のビームライン BL19LXU において行った。一般的な半導体材料であるヒ化ガリウム (GaAs) に波長 800 nm、パルス幅 100 fs のレーザーを照射した場合の格子間隔の時間変化について、(1) 励起強度依存性と、(2) 電子励起による格子歪の時定数の測定を試みた。GaAs 格子歪の表面垂直方向成分を取り出して観測するために、単結晶試料の回転機構に加えて、角度アナライザー結晶を使用する三結晶回折法を適用した。また、測定には励起用レーザーと放射光パルスの時間間隔や、ゴニオメーターの角度を制御する必要があるため、測定プログラムを LabVIEW によって作成した。格子定数変化は表面方向である 400 回折線付近の回折角数点の強度を測定し、フィッティングによって回折プロファイルの中心角変化から求めた。(1) では、レーザーパワーが強くなるに従って格子膨張率も大きくなるが、レーザーパワーがおよそ 1.3 mJ/cm^2 を超えると格子定数が増えることはなく、その格子膨張限界値はおよそ 1.4×10^{-4} であるという結果が得られた。一方、膨張が緩和する時定数は、レーザーパワーが強くなるほど大きくなることがわかった。(2) では、熱膨張と区別して電子励起による格子歪の時定数を評価するために、最初にレーザーパルス照射した後 3 ns 以内にもう一度レーザーパルスを照射して膨張率変化の依存性を調べた。レーザーパルスを同時照射した場合は格子膨張の割合が限界値を超えないが、レーザーパルスの時間間隔が大きくなるにつれ、2 発目のレーザーパルス照射による格子膨張の割合が大きくなる傾向が見られ、(1) で得られた格子膨張限界値の 1.4×10^{-4} を超えた。これより、電子励起による膨張に熱膨張の成分が含まれていることがわかった。また、(1) での格子膨張の時間特性を、レーザー遅延時間をつけて足し合わせた結果と比較して、電子励起による膨張のみを抽出することができた。その結果、電子励起による膨張の緩和時間がおよそ 144 ps であることを初めて見積もることができた。

また、電子バンチを変形させることによって、放射光パルスの時間幅を 40 ps (FWHM) からより短くすることができる。低- α モードという運転では 10 ps (FWHM) 程度のパルス幅を実現でき、これを用いて同様の時間分解 X 線回折測定を試みた。結果、通常運転と同じ測定結果が得られ、これまで測定した時定数は測定系の時間分解能によって制限されているものではなく、現象自体の時定数を表していることが明らかになった。