

## 2P061

### 固体試料の時間分解 X 線回折測定に向けた試料走査法と時間原点の検討

(東北大院・理<sup>1</sup>) ○久保田明夫<sup>1</sup>, 五月女光<sup>1</sup>, 梶本真司<sup>1</sup>, 福村裕史<sup>1</sup>

### Development of a sample scanning system and determination of time origin toward time-resolved X-ray diffraction measurements for solid sample

(Tohoku univ.<sup>1</sup>) ○Akio KUBOTA<sup>1</sup>, Hikaru SOTOME<sup>1</sup>, Shinji KAJIMOTO<sup>1</sup>, Hiroshi FUKUMURA<sup>1</sup>

【序】X 線回折法は結晶構造や分子構造を直接的に決定する有用な手法である。高強度のフェムト秒レーザーを物質表面に集光照射すると、物質表面に生じたレーザープラズマからサブピコ秒の時間幅を有するパルス X 線が発生することが知られている。このパルス X 線とフェムト秒パルスレーザーを組み合わせることで、ポンププローブ法にもとづく時間分解 X 線回折測定が可能となり、光励起された分子構造や結晶構造の緩和ダイナミクスを観測することが可能になる。

電子デバイスなどで中心的な役割を果たす半導体材料としてシリコンが挙げられる。バンドギャップ励起にともなうピコ秒領域での過渡的な結晶構造を観測し、結晶の格子緩和ダイナミクスを明らかにしたいと考えている。しかし、シリコン結晶に励起光であるフェムト秒レーザーパルスが高い繰り返し周波数で連続照射すると熱の蓄積により試料損傷が起こるという問題がある。また、可視領域の励起光とプローブ X 線の時間原点の決定をする必要がある。本研究では、X 線と同じ光路を通過させたレーザー光を用いた過渡吸収分光による時間原点の決定法について報告する。また、試料を走査させることで繰り返し照射によるシリコン結晶への熱の影響を軽減させ、シリコン結晶に光照射させた時の $\sim 10\text{ps}$ と $+5\text{ps}$ の変化について報告する。

【実験】図 1 に構築した時間分解 X 線回折系と過渡吸収測定系を示す。時間分解 X 線回折測定のために利用したパルス X 線は Ti:Sapphire 再生増幅器(800 nm, 2.5 kHz, 150 fs)の基本波を対物レンズ(Mitsutoyo, M Plan Apo, 20x)を用いて、鉄ターゲットに集光照射することによって発生させた。発生させた X 線をプローブ光として X 線レンズで集光し、ポンプ光は分割させた 800nm のレーザー光とし、試料である n 型シリコン(111)面の結晶に照射した。この時、試料を電動モーターで走査させた。回折した X 線は X 線 CCD により検出した。過渡

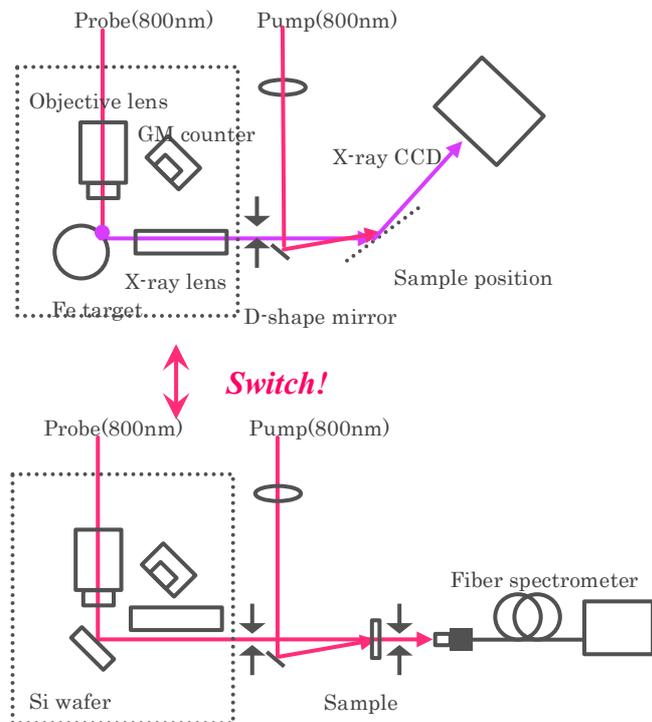


図 1 時間分解回折と過渡吸収測定のための実験配置図

吸収分光測定により時間原点を決定するため、時間分解回折系を切り替え、時間分解回折で用いるプローブ光 800nm に強い吸収帯があるインドシアニングリーン(ICG)をエタノール溶媒中に溶解させ、過渡吸収測定を行った。

【結果と考察】図2にエタノール溶液中のICGに800nmのポンプ光を照射し、X線と同じ光路をたどる800nmのプローブ光の透過光強度を遅延時間に対してプロットしたものを示す。800nm励起に伴う基底状態のブリーチングを反映した透過光強度の増加が観測された。その時間変化を積分されたガウス関数を用いてフィッティングすることによって時間原点を決定した。この方法により、励起光とX線の時間原点は±1.7psの精度で決定できた。このようにして決めた時間原点に基づき、時間分解X線回折測定を行った。遅延時間-10psと+5psにおける回折パターンを図3に示す。検出した回折パターンを2つのガウス関数を用いて近似した。近似させたときのそれぞれのピーク位置を比較すると、遅延時間-10psのピーク位置に比べて+5psのときのピーク位置に変化が見られた。統計的な処理により誤差を求め、-10psと+5psのピーク位置の変化が優位であることを確認した。+5psの回折ピークは-10psの回折ピークよりも低ピクセル側に移動しており、低ピクセル側の移動は高角度方向に対応しているため、光励起+5psの時にシリコン結晶の格子間隔が収縮していると考えられる。今後は遅延時間を数多くとり、シリコン結晶の格子緩和ダイナミクスについて検討する。

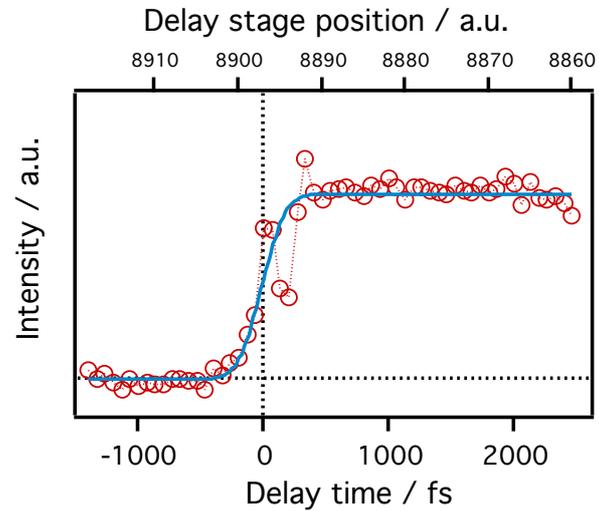


図2 800nm励起に伴うICG溶液の透過光強度時間変化

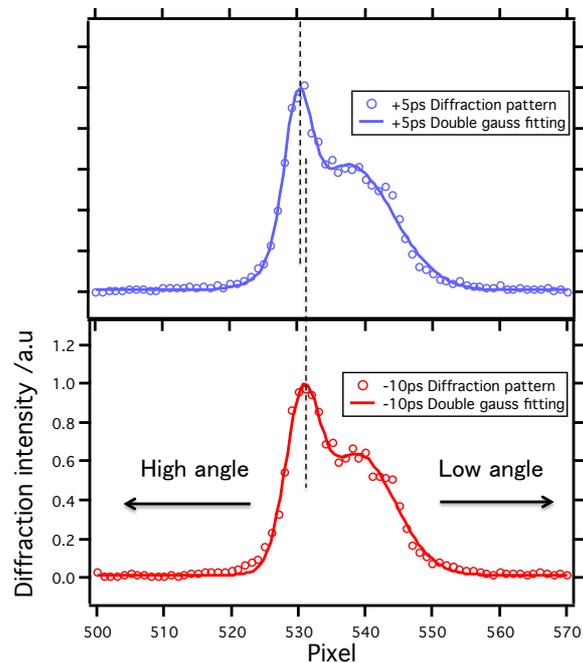


図3 パルスX線による遅延時間-10ps,+5psの時のシリコン結晶の回折パターンの変化