

令和 4 年 6 月 14 日現在

機関番号：24506

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H04397

研究課題名(和文) X線励起による半導体単結晶のバンドダイナミクスの研究

研究課題名(英文) Energy band structure dynamics of a semiconductor single-crystal by X-ray excitation

研究代表者

田中 義人 (Tanaka, Yoshihito)

兵庫県立大学・理学研究科・教授

研究者番号：80260222

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,500,000円

研究成果の概要(和文)：X線パルス励起に対する半導体単結晶のバンドギャップ近傍の高速光学応答を、分光学的手法を用いて調べた。ヒ化ガリウム半導体単結晶を対象として、X線自由電子レーザー施設SACLAにてフェムト秒X線ポンプ・広帯域近赤外光プローブ法を行った結果、ピコ秒以内にエネルギーギャップが収縮し、その後、数ピコ秒で高エネルギーキャリアがバンドの底に緩和していることがわかった。近赤外光励起時では、これらの現象はピコ秒以内で起こるが、X線パルス励起時にはキャリアのバンド内での平衡状態に数ピコ秒を要するという、高エネルギー励起に特徴的な現象が明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

半導体素子はその優れた電気特性のために、様々な光や粒子の検出に広く利用されている。本研究では、半導体素子にパルスX線が照射されたときの高速応答を、電気信号応答より4桁以上速い観測能力をもつ過渡吸収分光を用いることにより、電気特性に關与する高速の電子状態の振る舞いを観測した。結果、通常の光学パルスが照射されたときに比べて一桁程度遅い特徴的な電子分布回復過程が観測された。X線の高速センサーとしての特徴や損傷過程について、基礎的かつ包括的な知見が得られた。

研究成果の概要(英文)：Fast optical response of a semiconductor to femtosecond X-ray pulse irradiation has been investigated by time-resolved absorption spectroscopy. We performed X-ray pump - optical probe measurements for gallium arsenide using an X-ray free electron laser and a broadband optical pulse in the near infrared region covering the band-gap. The high time- and spectrum-resolution measurement revealed the ultrafast spectral change around the band-gap energy, showing that the band-gap shrinkage is instantaneously generated by highly-excited dense carriers, and that the hot carriers relax toward the bottom of band-gap and thermalize on a time scale of several picoseconds,

研究分野：放射光科学

キーワード：X線励起 X線自由電子レーザー 半導体 バンドギャップ 過渡吸収分光

1. 研究開始当初の背景

近年の放射光光源の開発は目覚ましく、短パルスの強いX線ビームを利用できるようになった。特に放射光X線のパルス性や高輝度特性を用いて、X線の時間分解計測が行われるようになり、時間分解X線回折法による光誘起構造相転移での結晶構造変化の観測や、X線光子相関計測によるソフトマターの動的挙動の観測などが行われるようになった。これらはプローブ光としてX線を使ったものである。より尖頭出力の高いX線自由電子レーザーや高輝度放射光が登場してからは、X線非線型光学過程や、X線励起過程など、高い尖塔出力を利用してX線で励起を行う研究報告がされるようになった。また、実用面でも、ヒ化ガリウムの光学薄膜単結晶にX線を照射することによる誘電率変化を利用したX線自由電子レーザーパルスと光学レーザーパルスのタイミング計測が行われるようになった。すなわち、X線による励起状態の研究に着手できる光源が利用可能になった。

X線が半導体試料に照射されると、主として内殻電子が励起され、それに引き続き、蛍光X線発生やオージェ過程を経由して、伝導帯に多くのキャリアが発生する。この過程におけるバンドギャップの挙動については、特定の波長のパルスレーザーで観測した例しかないので、基礎データが少なく、条件によってX線パルス照射により吸収率が增大するか減少するか異なっており、その解釈も様々である。一方、内殻の関与しない光学領域の強励起過程については、強励起時のバンドギャップの振る舞いはよく調べられている。X線での強励起でも同じ解釈が持ち込まれる傾向があるが、X線励起時に起こる非熱的な溶融過程が、可視光励起時とは異なり、サブピコ秒遅れて起こり始めるという報告もあり、未解明な点が多い。

2. 研究の目的

本研究では、X線パルス励起時の半導体単結晶のバンドギャップダイナミクスを、時間分解近赤外域の光学スペクトル変化を調べることで明らかにする。特に近赤外励起時との比較を行うことにより、X線励起に特有のダイナミクス、つまり半導体の高速X線物性について知見を得る。

3. 研究の方法

X線ポンプ・広帯域近赤外光プローブ法を用いて、時間分解透過・反射スペクトル計測を行った。図1に測定系を示す。X線自由電子レーザー施設 SACLA にて、ヒ素の K 吸収端を超える光子エネルギーをもつX線パルスを、厚み十数ミクロンのヒ化ガリウム半導体単結晶に照射し、X線パルスに時間同期したフェムト秒チタンサファイアレーザーをプローブ光として用いた。本研究ではスペクトル形状を取得するために、フェムト秒レーザーパルス光をサファイア結晶に集光することにより広帯域化し、試料で透過および反射した光を分散型ファイバー分光器にてスペクトルを取得した。また、比較実験として、同じプローブ系を大学の研究室で作製し、近赤外光励起に対する時間分解スペクトルを計測した。

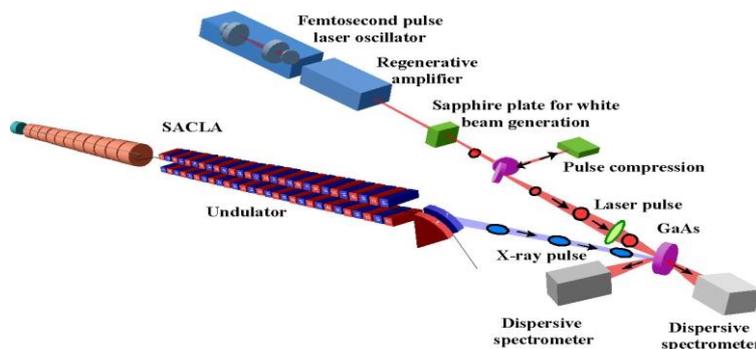


図1：X線ポンプ・広帯域近赤外光プローブ法を用いた時間分解透過・反射スペクトル計測法

4. 研究成果

図2に示すように、フェムト秒パルスX線励起後、ピコ秒以内に、バンドギャップに相当する吸収端が低エネルギー側にシフトし、その後、数ピコ秒の時定数で高エネルギー側へとシフトする様子が観測された。大型放射光施設 SPring-8 で時間幅数十ピコ秒のX線パルスで励起したときの光学応答では、低エネルギー側にシフトしてそれが数ナノ秒持続する様子が観測されたが、それとは異なる結果であった。これらの結果を比較することによって、励起X線のパルス幅およびパルスエネルギーの違いによる挙動について考察した。図3にバンドギャップ近傍の挙動とスペクトル変化形状の対

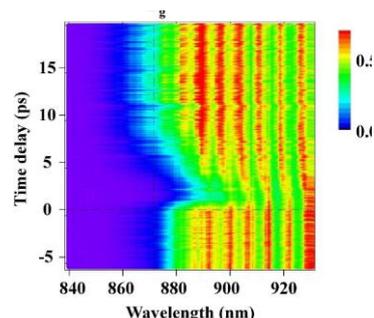


図2：X線励起時の時間分解近赤外透過スペクトル

応イメージを示す。サブピコ秒の時間スケールではバンドギャップ収縮が現れ、大ピークパワーのX線励起時には、数ピコ秒の時間スケールでバンドギャップの底に多くのキャリアが緩和して、それに起因する分布関数がバンドギャップ近傍のスペクトル形状変化をもたらしたと考えられる。

また、同じプローブ条件にて得た、近赤外域のフェムト秒パルスレーザー励起時の吸収スペクトル形状変化は、X線励起のものとは大きく異なるものであった。近赤外域のレーザーはヒ化ガリウムのバンドギャップをわずかに上回る光子エネルギーを有しており、伝導帯の電子分布を直接変化させる効果を観測できる。このとき観測された分布関数形状の応答は、ピコ秒以下であった。

総合すると、X線励起時のバンドギャップ近傍のキャリアの分布変化の応答は、直接的な伝導帯への励起のときに比べて桁で遅くなっていることがわかった。このことから、X線励起時の半導体バンドギャップ近傍のキャリアの振る舞いには、特徴的な遅い緩和過程が現れることが明らかになった。

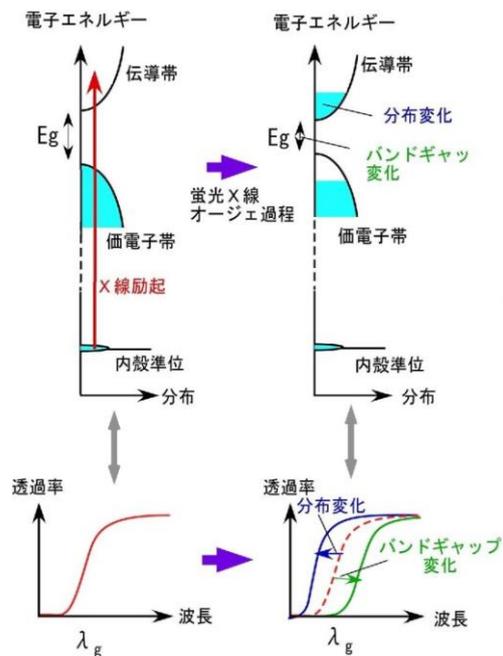


図3：X線励起時のバンドギャップ付近の挙動

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 近藤啓介, 鈴木基寛, 安田伸広, 福山祥光, 久保田雄也, 富樫格, 岡部純幸, 田中義人
2. 発表標題 XFEL励起によるGaAs半導体の近赤外過渡吸収分光
3. 学会等名 第34回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 近藤啓介, 西村渉, 鈴木基寛, 安田伸広, 福山祥光, 久保田雄也, 富樫格, 長谷川尊之, 田中義人
2. 発表標題 フェムト秒パルスX線励起に対するGaAsの高速近赤外光応答
3. 学会等名 応用物理学会2019年秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 近藤啓介, 西村渉, 鈴木基寛, 安田伸広, 福山祥光, 久保田雄也, 富樫格, 田中義人
2. 発表標題 XFELポンプ・光学プローブによるGaAsの高速バンドギャップ収縮の観測
3. 学会等名 放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 鈴木基寛, 泉瞭, 岡部純幸, 久保壮生, 堀尾眞史, 鷲見寿秀, 和田哲弥, 久保田雄也, 宮西宏併, 富樫格, 松田巖, 大河内拓雄, 山田貴大, 田中義人
2. 発表標題 XFEL照射によって誘起されるフェムト秒磁気ダイナミクス
3. 学会等名 第35回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 泉瞭, 鈴木基寛, 久保田雄也, 宮西宏併, 富樫格, 大河内拓雄, 松田巖, 山田貴大, 田中義人, 岡部純幸, 久保壮生, 和田哲弥, 鷺尾眞史, 鷺見寿秀
2. 発表標題 可視光プローブ時間分解磁気顕微鏡の開発とXFEL誘起高速磁気ダイナミクスの解析
3. 学会等名 第35回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Y. Tanaka, K. Kaneshima, N. Yasuda, Y. Fukuyama, K. Yamada, M. Suzuki
2. 発表標題 X-ray pump and optical probe experiments for materials science at synchrotron and XFEL facilities
3. 学会等名 Conference on Laser and Synchrotron Radiation Combination Experiment (LSC2022) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

X線励起近赤外過渡分光 https://www.sci.u-hyogo.ac.jp/material/photo_phys/tanaka/index_j.html
--

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	鈴木 基寛 (SUZUKI MOTOHIRO) (60443553)	関西学院大学・工学部・教授 (34504)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	安田 伸広 (YASUDA NOBUHIRO) (10393315)	公益財団法人高輝度光科学研究センター・回折・散乱推進室・研究員 (84502)	
研究分担者	福山 祥光 (FUKUYAMA YOSHIMITSU) (20332249)	公益財団法人高輝度光科学研究センター・回折・散乱推進室・研究員 (84502)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関