Ge-Sb-Te 系光相転移材料の光励起直後の構造ダイナミクス

カルコゲナイド系 Ge-Sb-Te 光相転移材料 (GST) は，レーザー照射による結晶相-アモルファス相間の可逆的相転移，両相の熱的な構造安定性，二相間の大きな光学反射率の違いを利用して，DVD やブルーレイディスクなどの書換型光ディスクに広く用いられている．この系においては近年，フェムト秒の極短パルス幅をもつレーザーの照射により，従来はナノ秒オーダーで起こるとされてきた結晶相からアモルファス相への相転移がピコ秒で起こるという報告がなされ，記録速度の飛躍的な向上や消費電力削減の可能性から注目を集めている．このフェムト秒レーザー照射による高速アモルファス化のメカニズムの解明は今後の材料設計に対し非常に重要であり，理論計算などをベースにいくつかのモデルが提案されている．しかし，これらのモデルはいずれも実際の構造変化を直接観察して得られたものではなく，どのような過程で構造変化が進行するのかについては未だ不明な点が多い．そこで本研究ではフェムト秒レーザー励起による GST の光励起直後の構造ダイナミクスを明らかにすることを目的とし，ピコ秒時間分解 X 線回折測定(XRD)を用いて GST の特徴的な組成である $Ge_2Sb_2Te_5$ と GeTe のフェムト秒レーザー励起直後の結晶構造の変化の測定を行い，高速相転移挙動のメカニズムについて考察した．$Ge_2Sb_2Te_5$ と GeTe における複数の指数の回折線の測定から，回折強度の変化が格子変形よりも先行して生じるという結果が得られた．この回折強度変化を解析することで，フェムト秒レーザー励起から数ピコ秒以内の初期時間に Ge 原子の変位あるいはデバイ･ワーラー因子が Te 原子のそれらと比べて特異的に大きくなることが明らかとなった．具体的には，局所構造の八面体中で，Ge 原子が中心からの変位を保ちながら，ある球殻上を動いて等価な 111 変位サイト間を行き来する「Rattling motion」が起こることが，X 線回折強度の変化を首尾一貫して満足するための「Ge の初動」として示された．このように Te の Sublattice が比較的安定でありながら，Ge の Sublattice があたかも融解したかのように見えることから，この現象を Sublattice melting と呼び，これが GST 系における高速相転移の前駆現象であることを示唆した．また Sublattice melting を起こしている間に，応力や歪などのバイアスをかけておくと，その方向に有利なドメインの単一化が誘起されることが明らかとなった．これにより，光誘起により本来はランダム方向に励起移動する Ge の変位方向を制御できる可能性が示された．