

(続紙 1)

京都大学	博士 (工 学)	氏名	羽 田 真 毅
論文題目	Direct Observation of Ultrafast Lattice Dynamics with Femtosecond X-ray Diffraction (フェムト秒 X 線回折法を用いた超高速格子ダイナミクスの直接観察)		
(論文内容の要旨)			
<p>本論文は、レーザープラズマ X 線を用いた時間分解フェムト秒 X 線回折法を構築し、光励起した結晶の過渡的な状態における新しい知見を得たことを報告するものである。論文は 5 章からなっている。以下に各章に分けて論文の概要を説明する。</p> <p>第 1 章は序論であり、フェムト秒レーザーを用いた超高速過渡現象の観測に関するこれまでの研究として、真空中に取り出した孤立分子における光励起過程を取り上げ、時間分解分光法 (ポンプ・プローブ分光法) に関する研究の契機及び現状について述べている。さらに、より複雑な系である固体における光励起過程について言及した後、パルス X 線やパルス電子線を用いた時間分解結晶構造解析法の特徴とその科学的・工学的意義について説明している。</p> <p>第 2 章はフェムト秒レーザーやポンプ・プローブ分光法に関する原理や実験を示している。まずフェムト秒レーザーのレーザー発振やパルス圧縮・パルス計測などに関して、それぞれの原理や特徴を説明している。さらにフェムト秒レーザーを用いた反射型ポンプ・プローブ分光法によって観測されたビスマス薄膜の A_{1g} モードのコヒーレントフォノンや単結晶シリコンの超高速固液相転移現象の詳細について言及している。</p> <p>第 3 章はレーザープラズマ法を用いたパルス X 線発生に関して記述している。まずフェムト秒レーザーを用いたレーザープラズマ X 線の発生原理について言及し、X 線強度とパルス幅に関して計算機シミュレーションの結果を基に理論的な考察を行っている。さらに、フェムト秒レーザーを大気中・ヘリウム雰囲気中・真空中などの様々な雰囲気の下で銅ターゲットに集光し、パルス X 線を発生させ、その $K\alpha$ X 線強度からレーザープラズマ中の電子と大気中の原子・分子の衝突反応に関するモデルを提案している。</p> <p>このモデルによると、発生する X 線はターゲット表面近傍の雰囲気ガスに大きく依存し、大気圧であってもヘリウム雰囲気下であれば、高強度の X 線が発生可能であることが予想された。さらに、テーブルトップ型の大気圧ヘリウム雰囲気下のパルス X 線源を試作し、大気圧下であっても高強度 (5×10^9 cps 以上) かつ高安定な (3% rms 以下) パルス X 線の発生が可能であることを実験的に示している。このとき出力されるパルス X 線のパルス幅は理論計算により 250 fs 程度であると予想される。</p>			

第4章はフェムト秒 X 線を用いた時間分解 X 線回折実験に関して、半導体結晶や相転移結晶における超高速過渡現象の直接的観察について記述している。テーブルトップ型の大気圧ヘリウム雰囲気下レーザープラズマ X 線源から発生したフェムト秒パルス X 線を利用して、時間分解 X 線回折装置を構築した。このフェムト秒時間分解 X 線回折装置を用いて、テルル化カドミウム (CdTe) 単結晶の光励起現象を観察した。これにより、光励起後 100 ps 程度の間には、通常の熱平衡過程では説明がつかない非等方な格子変位が誘起されていることを明らかにした。さらに、CdTe 単結晶における格子運動エネルギーの伝播方向および伝播時間を示すことに成功した。

さらに、代表的な金属-絶縁体相転移物質であり、340K で相転移を生じる二酸化バナジウム (VO_2) を取り上げ、その相転移現象を観察した。 VO_2 は低温では、単斜晶相を、高温では正方晶相を示すことが知られている。 VO_2 薄膜の時間分解 X 線回折実験から、数ピコ秒の時間スケールにおいて単斜晶相、正方晶相のどちらにも属さない特異な遷移状態が存在することが明らかとなった。この遷移状態はバナジウム原子が遷移方向へ非等方的に揺らいでいる、もしくは振動しているものであると考えられる。この光励起による超高速で誘起される VO_2 の格子中の原子の揺らぎは、本研究により世界で初めて観測に成功したものである。このように大気圧ヘリウム雰囲気下の時間分解 X 線回折実験により、熱平衡状態の物理では説明できない熱非平衡物理学に関する新しい知見が得られることを示した。

第5章は総括であり、本論文で得られた成果を要約している。さらに、今後の研究の展望として、本研究で構築したフェムト秒 X 線回折法をより複雑な有機物に適用することにより、有機物中の原子運動の観測が可能であることを提案している。また X 線自由電子レーザーやフェムト秒電子線回折実験などを用いた高強度のパルスプローブを用いたシングルショットの時間分解結晶構造解析についても述べている。

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、大気圧下でのレーザープラズマ X 線発生メカニズムを解明し、レーザープラズマ X 線を用いた時間分解 X 線回折法により、光照射によって誘起される固体の超高速過渡現象を時間と原子位置を追って観測し、その成果をまとめたものである。得られた主な成果は以下のとおりである。

- (1) フェムト秒レーザーを大気中・ヘリウム雰囲気中・真空中などの様々な雰囲気下で銅ターゲットに集光し、レーザープラズマ X 線を発生させ、その X 線強度からレーザープラズマ中の電子と大気中の原子・分子の反応に関するモデルを提唱した。このモデルにより、発生する X 線強度はターゲット表面の雰囲気ガスに大きく依存し、大気圧下でもヘリウム雰囲気中であれば高強度のパルス X 線を発生させることが可能であることを示した。
- (2) テーブルトップ型の大気圧ヘリウム雰囲気下時間分解 X 線回折実験セットアップを世界で初めて構築した。時間分解 X 線回折法における時間分解能は 1 ps 以下、空間分解能は 0.1 Å 程度であることを示した。
- (3) 太陽電池などに利用が期待されているテルル化カドミウム単結晶の時間分解 X 線回折実験により、光励起後~100 ps の時間スケールにおいて、通常の熱平衡過程では説明ができない非等方な格子変位が誘起されていることを明らかにし、その格子変位エネルギーの伝播経路を示すことができた。
- (4) 金属-絶縁体相転移物質としてよく知られている二酸化バナジウム(VO_2)の時間分解 X 線回折実験により、光励起後~10 ps 以内に生じる遷移状態の結晶構造の直接観察に成功し、その相転移ダイナミクスに関するモデルを提唱した。

以上、本論文はフェムト秒 X 線回折法を用いた超高速格子ダイナミクスの直接観察に関する研究であり、物質・材料分野から生命科学分野にわたって新しい計測手法を提示するものであり、同時に熱非平衡物理学に関する新しい知見を与えるものである。よって本論文は博士(工学)の学位論文として価値あるものと認める。また、平成 22 年 10 月 26 日、論文内容とそれに関連した諮問を行った結果、合格と認めた。