

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 中村 飛鳥

「Ultrafast dynamics of crystal lattices investigated by pulsed x-ray and electron beams (パルスX線及び電子線を用いた超高速格子ダイナミクスの研究)」と題された博士論文の審査結果について、以下に述べる。

近年物質科学分野において、非平衡状態を積極的に利用した新しい物性や機能の創出への関心が高まっている。物質を構成する原子や電子の動きは非常に高速(アト秒~サブピコ秒)であり、非平衡状態におけるダイナミクスの研究を行う上でこれまで超短パルスレーザーの果たしてきた役割は大きい。最近では特に、レーザーと同期したパルス電子線やX線を用いた回折実験により、結晶構造が示すダイナミクスを直接観測することが可能となってきた。本研究は、このような先端的な計測手法を用いることにより、多様な物質を対象とした新しい結晶ダイナミクスを探索することを目的として行われた。まず中村氏はフェムト秒レーザーとフォトカソード電子銃を組み合わせた超高速電子線回折装置(UED)の開発を行った。この際多様な物質における多様な時間スケールの現象の探索を視野に入れ、透過率の高い高圧電子銃と繰り返し数が可変な光源を選択したこと、さらに高効率の測定を可能とする全自動化に尽力したことが特色である。また、UEDでは到達できない強励起現象を探求する際には、日本で唯一稼働しているX線自由電子レーザーSACLAを積極的に利用した実験を行った。これらの手法を相補的に駆使することにより、中村氏はAu, Cu, Moなどの単純金属や特異な構造不安定性に着目し選んだ VTe_2 および MoTe_2 を対象とした超高速格子ダイナミクスの観測実験を行った。この結果、単純金属における電子格子熱化現象を定量的に明らかにするとともに、 VTe_2 と MoTe_2 において巨大な横波(シアー)コヒーレント音響フォノン生成や準安定状態形成の示唆などこれまでに報告例のない新しい非平衡現象を見出すことに成功した。

以下では各章ごとに内容を詳細に述べる。

第1章では、研究背景として結晶が示す超高速ダイナミクスについての一般的な説明がされている。また、対象とした遷移金属ダイカルコゲナイド(TMDC)の特徴とこれまでの超高速X線回折(UXRD)及びUED実験の結果が紹介された後、新しい格子ダイナミクス探究の舞台としてTMDCに着目した理由が述べられている。

第2章では、本研究において用いた実験手法であるUEDおよびUXRDについて、その原理や特徴が述べられている。

第3章では、東大で行ったUED装置の開発と性能評価について述べられている。中村氏は、超短パルス(190 fs)レーザー光源を60 kVフォトカソード電子銃と組み合わせたUEDの開発を行い、750 fs以下の時間分解能を達成した。本装置を用いることにより、第4章と第5章の実験が行われた。

第4章では、遷移金属(Au, Cu, Mo)薄膜における電子と格子の熱化ダイナミクスについて述べられている。UED強度をデバイワラー因子で解析することにより格子温度の過渡応答を求め、

時間分解光学測定で得られる電子温度と比較したものである。これにより、電子格子熱化現象の最も単純なモデルである 2 温度モデルの妥当性について検証している。

第 5 章では、ジグザグ鎖状の電荷密度波を有する VTe_2 の格子ダイナミクスについて述べている。UED により瞬間的な電荷密度波の融解およびシアーコヒーレント音響フォノン生成が観測された。回折強度を解析することにより、これまでに例のない非常に大きな横波成分を持つコヒーレント音響フォノンが生成されることが明らかとなった。

第 6 章では、極端に強い光励起により生じる MoTe_2 の格子ダイナミクスについて述べている。SACLA において UXRD により $1\text{T}'\text{MoTe}_2$ の超高速ダイナミクスを観測し、50 ps 以上の長時間にわたり増え続ける特徴的な原子変位が強励起でのみ起こることを明らかにした。この結果は、 MoTe_2 が準安定な結晶構造を持つ相へと変化していることを示唆している。

第 7 章では、第 4~6 章において得られた実験結果について総合的な議論が行われている。特に、5 章で得られた VTe_2 のシアーコヒーレントフォノン生成の起源について議論を行い、構造不安定性との関連について述べている。また、今後どのような物質で新規な格子ダイナミクスが期待されるかについて、本研究の結果をもとに得られた知見が述べられている。

第 8 章では、本研究によって得られた成果がまとめられている。

本研究は、超高速電子線回折および X 線回折という先端的な計測手法をもとに、単純金属系の光による熱化という基本的な非平衡現象を観測し定量的な議論を行うとともに、 VTe_2 や MoTe_2 などの特徴的な格子不安定性を持つ物質群に着目し新奇な動的格子現象を引き出すことに成功したものである。これらの結果は、非平衡状態を積極的に利用した新物質科学の発展に寄与するとともに、今後フォノンクスなどの工学分野への展開をも予感させるものである。よって、本論文は博士(工学)の学位請求論文として合格と認められる。