

論 文 の 内 容 の 要 旨

論文題目： ピコ秒時間分解 X 線回折システム構築に関する研究

氏名： 木下 健一

本論文では、ピコ秒領域の物質内原子・分子の配列変化を観測するための手法として、極短 X 線パルスを用いた時間分解 X 線回折法の開発を行っている。従来より X 線回折は物質のミクロな構造を解明するために利用されてきたが、近年の極短パルス X 線源の登場によって、物質内高速過渡現象における原子分子の構造変化の直接観測に道が開かれつつある。物質内高速過渡現象を観測する手法としては、近年発展著しいフェムト秒レーザーを用いたフェムト秒レーザー分光等が先行しており、半導体内誘電率時間変化や分子結合状態推移など、物質電子系の振舞いに関する研究に応用されている。一方、格子系については、レーザーによるプローブからは間接的な情報が得られるのみである。そこでプローブパルスとして極短 X 線パルスを用いることで、高速過渡現象における物質格子系の直接観測が可能になると考えられている。本研究では、極短パルス X 線発生法として、サブピコ秒電子パルス固体照射による X 線発生および 12TW50fs レーザーによるレーザープラズマ X 線発生を採用し、超短パルスレーザーによって照射された単結晶からの X 線回折像の時間変化をポンプ&プローブ法を用いて取得するシステムの構築を行った。

本論文の構成は以下の通りである。

第 1 章では、本研究の主題である時間分解 X 線回折について基本的な解説を行うとともに、本研究における背景として、極短パルス X 線生成法と時間分解 X 線回折をめぐる最近の研究状況を概観している。また、東大原施ライナックにおける短パルスビーム生成技術について紹介し、本研究の目的と位置付けについて述べている。

第2章では、電子ライナックからのサブピコ秒電子パルスの固体照射による極短 X 線発生（ライナック X 線）と時間分解 X 線回折への適用について述べている。電子ライナックからのサブピコ秒パルスを時間分解 X 線回折用 X 線源として用いるためには、電子・X 線変換における短パルス特性の保持が要求される。また、電子固体照射時には時間分解 X 線回折に用いられるターゲットからの特性 X 線の発生に加え、高エネルギー電子線からの制動放射 γ 線等、いくつかのノイズ成分の発生が考えられるため、S/N 比の最適化が重要となる。そこでまず、電子・X 線変換時に発生する X 線の特性評価を、電子光子輸送モンテカルロ計算コード EGS4 を用いた数値計算によって実行し、X 線スペクトル、パルス波形等を詳細に求めている。続いて、それらの計算結果に基づき、東大原施ライナックを用いた X 線発生および X 線回折実証実験を行い、その結果について解説している。さらに、3TW レーザーとライナックの同期運転により、レーザー照射された結晶からの X 線回折像の取得を行い、その結果を紹介している。図1は数値計算によって求めた銅箔ターゲットからの X 線パルス波形である。厚さの増加に従ってパルス伸長が起こっているが、その大きさはサブピコ秒領域に留まっていることが判る。図2は単結晶試料によって回折したライナック X 線のプロファイルである。ターゲットからの2つの特性 X 線、 $K\alpha_1$ と $K\alpha_2$ によるピークがはっきりと分離されていることが確認できる。

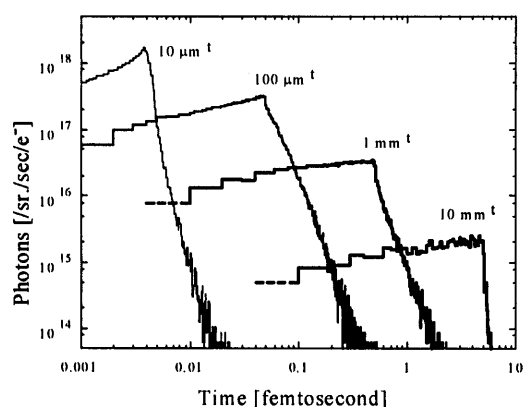


図1 ライナック X 線のパルス波形

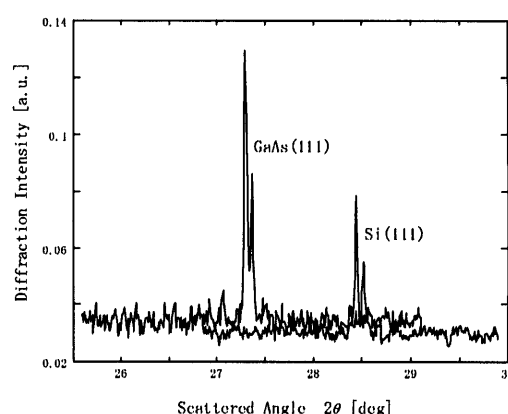


図2 ライナック X 線回折プロファイル

第3章では、12TW50fs レーザーを用いた X 線発生と時間分解 X 線回折への適用について述べている。大強度超短パルスレーザーの集光により 10^{17} W/cm^2 程度の光パルスが固体ターゲットに照射されると、発生するプラズマ中の電子温度は数 100 keV に達することが言われており、従って、ここでもまた S/N 比の向上が課題となる。さらに、ポンプ&プローブ実験への適用のためには、ターゲットより発生する2つの特性 X 線、 $K\alpha_1$ と $K\alpha_2$ を分離するのに十分なほど小さな X 線光源サイズが求められる。また、試料結晶に蓄積する損傷の影響を抑えるためには、X 線発生強度を向上する必要がある。それらの点を勘案しつつ、

ここではレーザープラズマ X 線に対する基礎的な評価を行うとともに、S/N 比の向上に重点を置いて実験体系の構築を行っている。加えて、ポンプ&プローブ実験の際に必要な時間軸の校正を行うために、フェムト秒ストリークカメラを用いたパルス測定系を設置し、測定結果の評価を行っている。続いて、構築された実験体系を用いて実際にポンプ&プローブ測定を実行した結果について述べている。ここでは試料結晶として GaAs(111) を使用し、パルス幅約 50fs の超短パルスレーザー照射によって誘起された過渡現象進行中における X 線回折像を取得し、その変化の測定に成功している。図 3 はレーザープラズマ X 線体系図である。12TW レーザによる ~ 600 mJ/pulse、パルス幅 ~ 50 fs のレーザーパルスを焦点距離 162mm の Off-Axis Parabolic ミラーにより銅板(無酸素銅) 表面に集光し、レーザープラズマ X 線発生を行った。図 4 は GaAs(111) より回折したレーザープラズマ X 線回折像である。Bragg spot は Cu K α 線に対応している。図 5 は超短パルスレーザー照射された結晶からの X 線回折像および水平方向プロファイルである。レーザー照射によって元の回折ピークの左側に新たなピークを生じている。図 6 は X 線回折プロファイルの時間発展であり、ピコ秒領域での時間変化の取得に成功している。

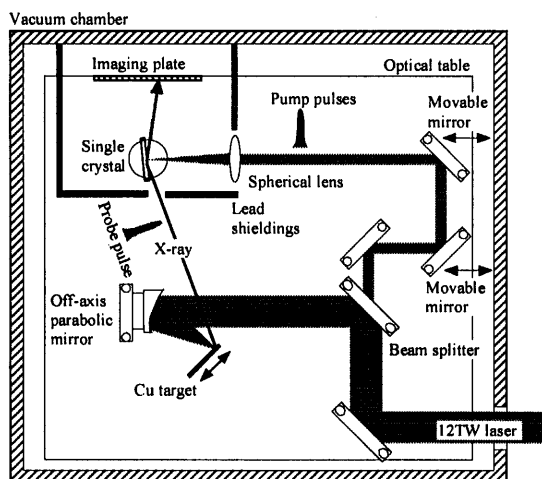


図 3 レーザープラズマ X 線実験体系

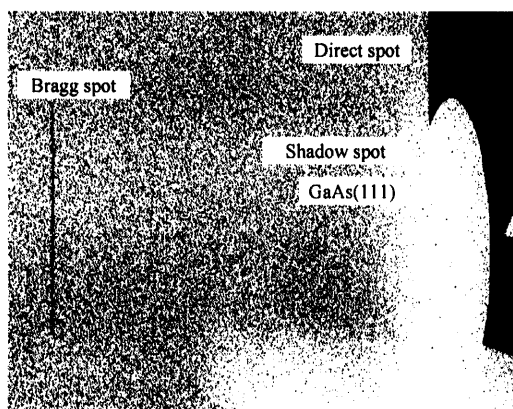
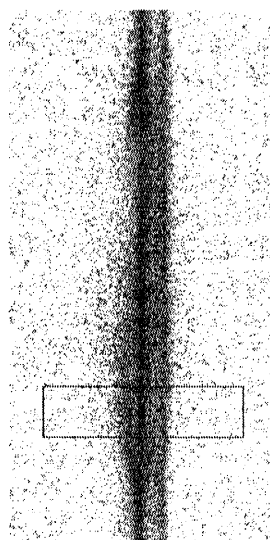


図 4 レーザープラズマ X 線回折像

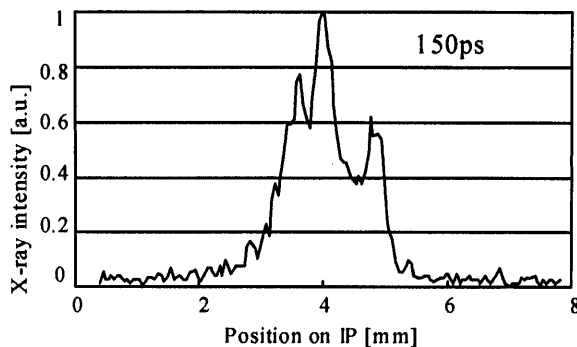


図 5 動的 X 線回折像およびプロファイル

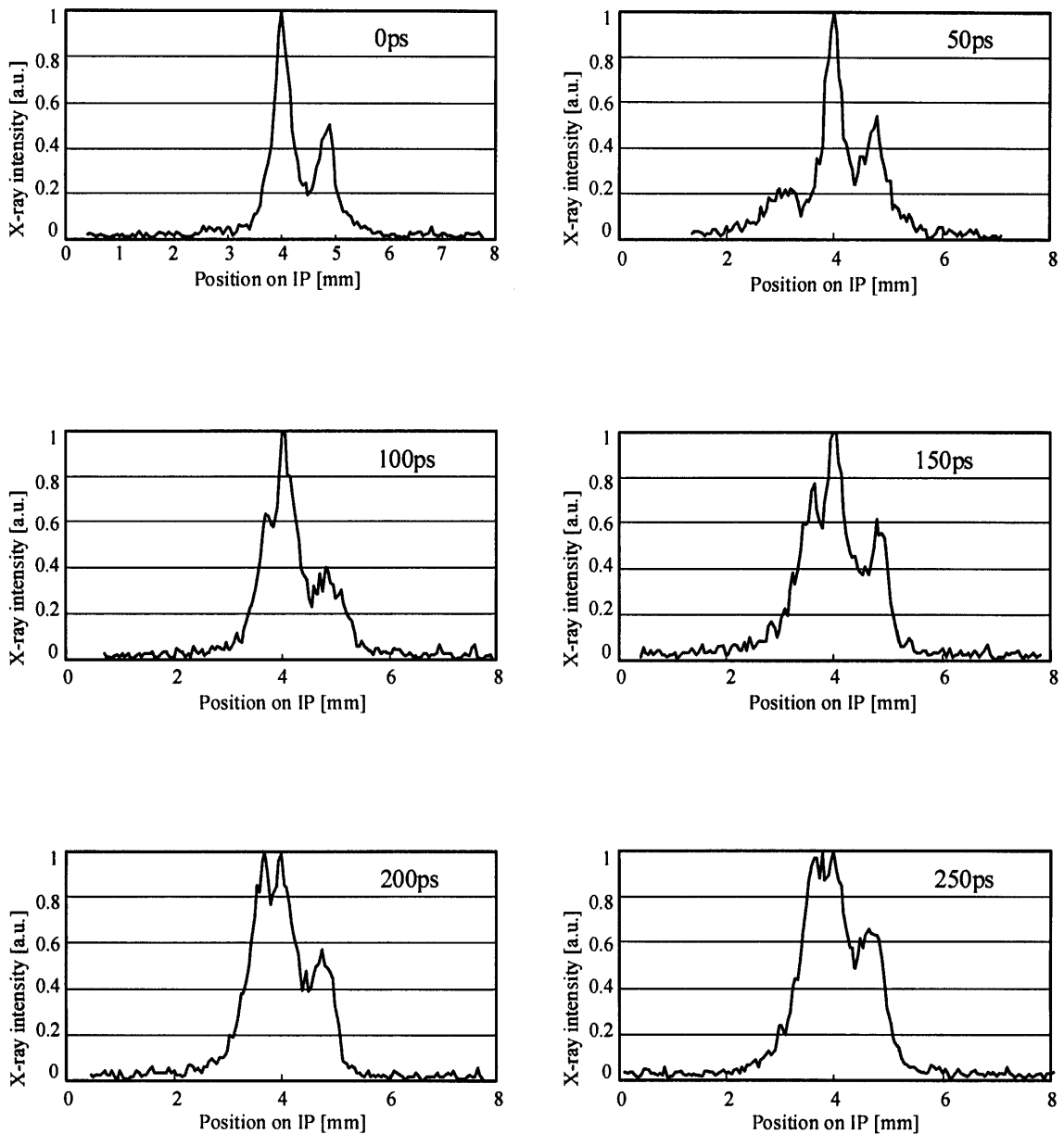


図 6 X 線回折像ピコ秒時間変化

第 4 章では、実験結果を解釈し、高速過渡現象における原子配列決定を行うための第一歩として、時間分解 X 線回折プロファイルを求める数値計算コードを作成し、実験結果との比較を行っている。ここでは、超短パルスレーザー誘起現象として、電子・正孔対生成による結晶内でのレーザー光の吸収と、引き続いての電子格子相互作用による緩和と格子の加熱を仮定し、急激な熱膨張による熱弾性論的歪み波の伝搬を導入する過程について解説している。続いて、運動学的回折理論に基づいて、数値計算によって歪んだ格子面間隔を持つ原子配列からの X 線回折プロファイルを求めている。図 7 は数値計算によって求めた X 線回折プロファイルと実験結果の比較である。1.4 mJ/mm² においては実験結果と同様

のサブピークが出現しているが、 0.6 mJ/mm^2 においてはサブピークは存在しない。また、実験においては全体的にピークのぼやけが生じているが、これはポンプ光の揺らぎのために、積算測定時の再現性が低下したためと考えられる。

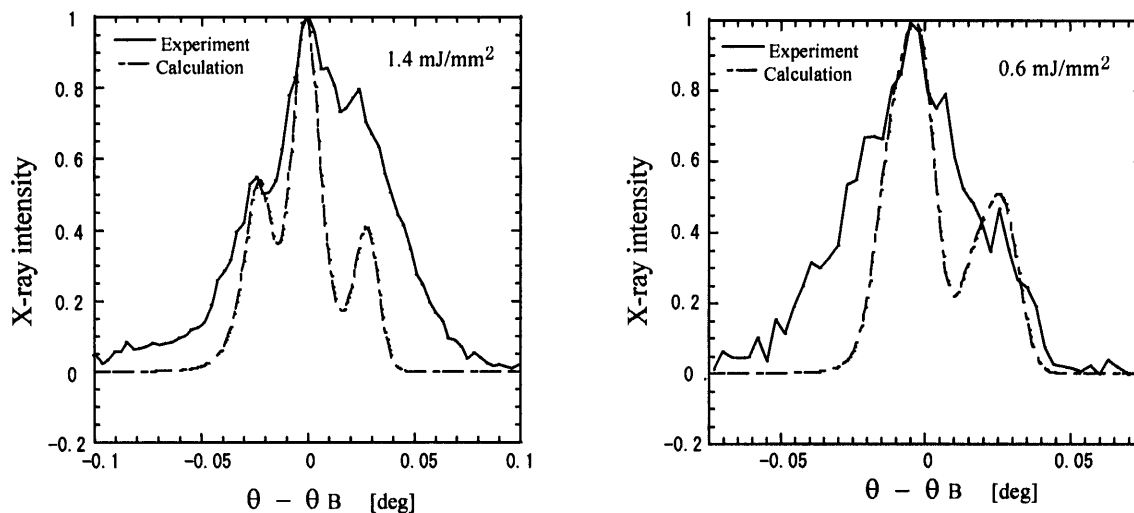


図 7 実験結果と数値計算の比較

最後に、本論文の結論が第 5 章に述べられている。本研究により得られた結論は以下の通りである。

- 1) 12TW50fs レーザーを用いた時間分解 X 線回折システムの構築を行った。また、ノイズ成分の除去を行い、高 S/N 比を達成した。さらに、実際のポンプ&プローブ実験によって、超短パルスレーザーに照射された GaAs(111)結晶からの回折像の変化を、ピコ秒時間領域にて取得した。
- 2) 東大原研ライナックからのサブピコ秒電子パルスを X 線に変換することで、サブピコ秒 X 線パルスが得られることを確認した。また、その X 線パルスを用いた X 線回折実験を行い、十分な S/N 比で回折像が得られることが判った。しかし、ライナック X 線においては、その強度の低さと、空気中でのレーザー照射による結晶の損傷により、回折像時間変化の取得には至らなかった。
- 3) 超短パルスレーザー誘起歪み波伝搬中の結晶からの X 線回折プロファイルを求める数値計算コードを作成した。また、時間分解 X 線回折実験結果との比較を行い、定性的に一致することを確認した。
- 4) GaAs 結晶に対して 2 種類のポンプ光強度で実験を行い、サブピークの出現が生じる場合と、生じない場合の 2 つの結果を確認した。それらは作成した数値計算コードの結果とも一致した。