

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 小 栗 克 弥

近年の超短パルスX線発生技術の急速な進展により、極端紫外から硬X線の波長域においてピコ (10^{-12})秒からフェムト(10^{-15})秒スケールの時間幅を持つパルスが発生可能となってきた。そのような超短パルスX線をプローブ光として利用して、X線と同期したレーザパルスによって励起された物質の時間発展をX線パルスによる内殻励起分光、回折効果、光電子放出等を通して検出するという時間分解X線計測技術が注目を集めている。このような分野は、従来のX線科学分野と超短パルスレーザ技術から発展した超高速光物理分野が融合した新しいフロンティアであり、「超高速X線科学」と呼ばれている。本論文の目的は、レーザ励起超短パルスX線源を利用し、時間分解X線吸収分光法を実証することである。特に、X線吸収分光法の中でもX線吸収微細構造に着目することによって、物質の局所構造や電子状態のダイナミクス計測へと拡張することである。この目的のために、筆者はまず時間分解X線吸収分光法の時間分解能を制限するX線のパルス幅計測技術の研究を行い、その後時間分解X線吸収微細構造計測の研究へと展開させており、この二本柱が本論文の主題である。

第1章では、序論としてレーザ励起超短パルスX線発生に関わる重要な背景、すなわち高強度超短パルスレーザ技術、高強度超短パルスレーザ光と物質の相互作用の物理、そして超短パルスX線発生技術とその応用研究の動向等などが記述された後、本論文の目的と構成について述べられている。

第2章では、本論文全体を通して使用されるチタンサファイアレーザチャープパルス増幅システムについて記述され、その波長・パルス幅特性が議論されている。

第3章前半では、時間分解X線吸収分光法の実証に先立ち、超短パルスX線発生技術の評価パラメータとして最も重要であるX線のパルス幅を計測する技術に取り組んでいる。筆者は、高強度レーザ光をガス等に照射した際に起こる光電界イオン化によるイオンの超高速密度変化を利用する相互相関法を提案している。その中で、光電界イオン化の時間発展を簡単なモデルで考察することにより、イオン化で生成する一価イオンの密度変化が、X線パルス波形計測においてスイッチとして動作する場合とゲートとして動作する場合の2つの可能性があることを見出している。後半では本方法の有効性を実証するために、レーザ励起X線源の代表的な軟X線源であるレーザプラズマX線のパルス波形計測を行い、スイッチ動作のスキームを用いてタングステンプラズマX線の計測を実証している。

第4章では、さらに上記の方法の有効性を示すため、より短いパルス幅を持つレーザ高次高調波のパルス波形計測を行っている。ここでは、ゲート動作のスキームを用いて51次高調波のパルス波形を計測しており、220 fs という計測結果を得ることにより本方法が少なくとも100 fs 程度の時

間分解能を有していることを明らかにしている。また、このゲート動作のスキームは、光電界イオン化過程において、中性原子から一価イオン、二価イオンとイオン化が段階的に進行する際に生じる一価イオンの過渡的状态を利用しているため、本方法の実証は、逆にそのような一価イオンの過渡的状态の存在を初めて実時間上で観測したことを意味し、興味深い結果と言える。

第 5 章では、物質の局所構造計測法として重要である X 線吸収端微細構造(XAFS)に着目し、それを時間分解計測へ拡張した時間分解 XAFS 計測法の実証について述べている。筆者は吸収分光に最適な連続スペクトル特性と数ピコ秒のパルス幅を持つ短パルス特性を兼ね備えたレーザープラズマ軟 X 線を利用して、Si 薄膜のレーザー融解過程の時間分解 XAFS 計測を行っている。レーザーパルス照射に伴って、Si の $L_{II,III}$ 吸収端近傍のスペクトル形状と $L_{II,III}$ 吸収端 EXAFS が変化する様子を観察することに成功し、レーザー融解の結果、Si の半導体的電子構造が、金属的電子構造に変化し、Si-Si 原子間距離が膨張していることが明らかになった。この結果は、従来レーザー融解の研究に用いられてきた超短パルスレーザーによる時間分解反射率計測等の時間分解光計測法では観測することが不可能であった原子構造に関する情報を直接計測可能であることを初めて実証できた点で意義深い。

第 6 章では、この時間分解 X 線吸収分光法を拡張し、空間情報を組み合わせた時間・空間分解 X 線吸収分光システムの構築とそれを用いたレーザーアブレーションプルームの時空間発展計測について報告している。筆者は透過型回折格子と Kirkpatrick-Baez 型斜入射反射型結像光学系を組み合わせることで 2 次元検出器上の 1 軸に空間情報、残りの 1 軸に波長情報が得られるシステムを構築し、Al サンプル表面から噴出するレーザーアブレーションプルームの軟 X 線吸収の時空間分解計測を行っている。この手法により、アブレーションプルーム中の粒子の時空間分布が計測可能であることを実証している。

第 7 章では、結論として各章の実験結果をまとめ、残された研究課題と今後の展望について述べている。

以上要するに、筆者は今後の超高速 X 線科学分野に必須な手法であるピコ秒領域の時間分解 X 線吸収分光法をレーザープラズマ X 線源を用いて実証し、これから汎用的な手法として発展していくための足がかりを築いた。この研究は、極端紫外や軟 X 線領域における時間分解計測による物性研究の端緒を切り開くものである。この研究は物理工学に大きく寄与するものであり、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。