

**平成29年度科学研究費助成事業（特別推進研究）自己評価書**  
**〔追跡評価用〕**

平成29年 4月17日現在

<b>研究代表者 氏名</b>	谷村 克己	<b>所属研究機関・ 部局・職 (研究期間終了時)</b>	大阪大学・産業科学研究所・教授
<b>研究課題名</b>	光誘起構造相転移動力学の研究		
<b>課題番号</b>	19001002	<b>研究期間</b>	平成19年度～平成23年度
<b>研究組織 (研究期間終了時)</b>	研究代表者 谷村 克己（大阪大学・産業科学研究所・教授） 研究分担者 那須 奎一郎（高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・名誉教授） 金崎 順一（大阪大学・産業科学研究所・准教授） 石丸 学（大阪大学・産業科学研究所・准教授） 楊 金峰（大阪大学・産業科学研究所・准教授）		

**【補助金交付額】（研究期間全体）（直接経費）：** 531,400 千円

1. 特別推進研究の研究期間終了後、研究代表者自身の研究がどのように発展したか

特別推進研究によってなされた研究が、どのように発展しているか、次の(1)～(4)の項目ごとに具体的かつ明確に記述してください。

(1) 研究の概要

(研究期間終了後における研究の実施状況及び研究の発展過程がわかるような具体的内容を記述してください。)

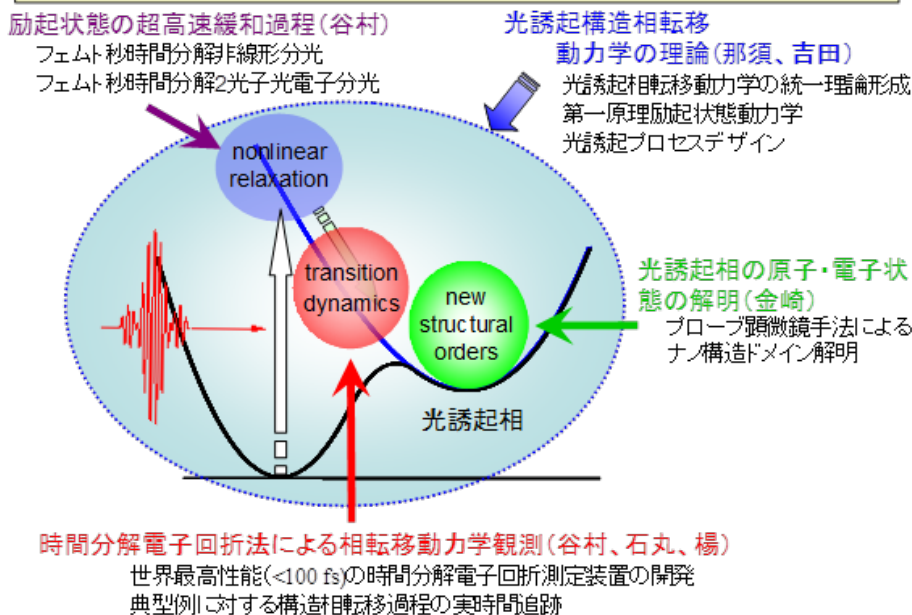
巨視的量子多体系としての固体が示す協力現象の典型例である構造相転移においては、格子構造・対称性・電子状態等が異なる相が、電子系と格子系との相互作用を協力的駆動力として転移する。光励起によって誘起される相転移（光誘起相転移）は、熱力学的な現象では隠された物質相の発見や創製を可能にし、又、相転移過程における支配的相互作用の抽出と多体系動力学の実時間追跡を可能にする。本研究は、代表的な光誘起構造相転移現象に対して、実時間・実空間上で可能な限り直接的な知見を獲得し、それに深い理論的考察を加えることによって相転移過程の微視的理解を達成し、光誘起構造相転移研究の革新的展開を図る事を目指した。

その為に、以下の4点に注力した研究を推進した。

- 1) 光誘起構造相転移の典型例を対象とした集中的かつ包括的研究による微視的機構の解明、
- 2) フェムト秒時間領域における電子系・格子系動力学の直接的な実時間追跡、
- 3) 走査型プローブ顕微鏡・電子顕微鏡による原子レベルでの光誘起相構造解析、
- 4) 最先端の手法を駆使した理論的研究による相転移過程の動力学解析。

特に、実験的手法的には、従来用いられてきた時間分解分光手法から得られる知見の間接性を排し、励起電子系緩和に対してはフェムト秒時間分解光電子分光法を、また格子系動力学追跡には、格子振動周期よりも短い $10^{-13}$ 秒以下の時間分解能を有する時間分解電子回折法を開発・適用した研究を進めた。下に、研究内容の概念図と、代表者分担者の協力関係を示す。

研究推進体制: 先端の実験手法と高度な理論的研究の有機的協力



関連研究者間の有機的協力と精力的な努力によって、装置開発も含めてほぼ完全な研究成果が得られた。これによって、代表的な光誘起構造相転移過程の微視的理解が達成できたと共に、今後の光誘起構造相転移研究における革新的展開を可能にしたと考える。

更に、後述するように、固体物理学分野のみならず、加速器学会、電子顕微鏡学会、レーザー学会等、多くの関連する学問分野に対しても、大きな学術上のインパクトを与えると共に、国際的にも、超高速構造科学推進に大きな影響を与えたものと確信している。

しかし、本研究成果にも関わらず、光誘起構造相転移過程の本質的な1面は捉えきれていない。それは、構造相転移過程が、空間的に一様な物質秩序転化の過程ではなく、核形成・ドメイン成長・ドメイン間相互作用等を主体とする、極めて空間的に非一様な現象である事に起因している。本研究で開発した時間分解電子回折法は、超高速な構造変化を直接検出できる極めて有用な手法であるが、回折測定はあくまで、観測領域の「構造的平均値」のみを与え、空間的な非一様性は、直接観測できない。光学測定や光電子分光測定においても、事情は同様である。この構造相転移過程（電子的な相転移も含めて）の核形成・ドメイン成長・ドメイン間相互作用を直接観測する手法開発とそれによる相転移過程の研究が、特別推進研究終了後の「一歩先」の課題であった。我々は、特別推進研究で達成した諸成果に立脚し、現在、原子イメージングが可能な、時間分解電子顕微鏡手法の確立とそれをういた相転移過程における核形成過程・ドメイン動力学の解明を目指した研究を進めている。世界的にも、時間分解原子イメージングを目指した研究が精力的に展開されているが、電子の空間電荷効果と短時間パルス特性、およびイメージングに必要な電子密度の間の矛盾は、容易には解決できていない。我々が、特別推進研究において開発した、シングルショット回折測定を可能にする相対論的電子パルスを用いた時間分解回折装置は、この時間分解電子顕微鏡開発に対して、強力なアプローチの基礎を提供している。超高速構造科学の新たな展開において極めて重要な超短時間シングルショット顕微鏡像測定の実現に向けて、精力的な努力を続けている。

## 1. 特別推進研究の研究期間終了後、研究代表者自身の研究がどのように発展したか（続き）

(2) 論文発表、国際会議等への招待講演における発表など（研究の発展過程でなされた研究成果の発表状況を記述してください。）

## 1. 発表原著論文 計 15 報 （代表的なものは以下の通り）

- 1) Structural dynamics of laser-irradiated gold nanofilms, S. L. Daraszewicz, Y. Giret, N. Naruse, Y. Murooka, J. Yang, D. M. Duffy, A. L. Shluger, and K. Tanimura, Phys. Rev. B **88**, 184101-1-12 (2013).
- 2) Determination of transient atomic structure of laser-excited materials from time-resolved diffraction data, Y. Giret, N. Naruse, S. L. Daraszewicz, Y. Murooka, J. Yang, D. M. Duffy, A. L. Shluger, and K. Tanimura, Appl. Phys. Lett. **103**, 253107-1-5 (2013).
- 3) Determination of the electron-phonon coupling constant in tungsten, S. L. Daraszewicz, Y. Giret, H. Tanimura, D. M. Duffy, A. L. Shluger, and K. Tanimura, Appl. Phys. Lett. **105**, 023112-1-3 (2014)
- 4) Nonthermal solid-to-solid phase transitions in tungsten, Y. Giret, S. L. Daraszewicz, D. M. Duffy, A. L. Shluger, and K. Tanimura, Phys. Rev. **90**, 094103-1-7 (2014)
- 5) State-resolved ultrafast dynamics of impact ionization in InSb, H. Tanimura, J. Kanasaki, and K. Tanimura, Sci. Rep. **4**, 6849-1-4 (2014).
- 6) Imaging energy-, momentum-, and time-resolved distributions of photoinjected hot electrons in GaAs, J. Kanasaki, H. Tanimura, and K. Tanimura, Phys. Rev. Lett. **113**, 237401 (2014).
- 7) Ultrafast scattering processes of hot electrons in InSb studied by time- and angle-resolved photoemission spectroscopy, H. Tanimura, J. Kanasaki, and K. Tanimura, Phys. Rev. B **91**, 045201 (2015).
- 8) Dynamical simulations of an electronically induced solid-solid phase transformation in tungsten, S. T. Murphy, S. L. Daraszewicz, Y. Giret, M. Watkins, A. L. Shluger, K. Tanimura, and D. M. Duffy, Phys. Rev. B **92**, 134110-1-9 (2015).
- 9) Formation of hot-electron ensembles quasiequilibrated in momentum space by ultrafast momentum scattering of highly excited hot electrons photoinjected into the G valley of GaAs, H. Tanimura, J. Kanasaki, K. Tanimura, J. Sjakste, N. Vast, M. Calandra, and F. Mauri, Phys. Rev. B **93**, 161203(R)-1-5 (2016).
- 10) Initial Atomic Motion Immediately Following Femtosecond-Laser Excitation in Phase-Change Materials, E. Matsubara, S. Okada, T. Ichitsubo, T. Kawaguchi, A. Hirata, P. F. Guan, K. Tokuda, K. Tanimura, T. Matsunaga, M.W. Chen, and N. Yamada, Phys. Rev. Lett. **117**, 135501-1-6 (2016)

## 2. 招待論文（解説・総合報告）3 報。

- 1) 日本顕微鏡学会誌：43 巻 1-4 (2013), Y. Murooka, N. Naruse, J. Yang and K. Tanimura, “Development of Ultrafast Relativistic-electron diffraction”.
- 2) レーザー学会誌：43 巻 144-148 (2015), N. Naruse, Y. Giret, J. Yang, and K. Tanimura, “Ultrafast crystalline-structural dynamics by time-resolved MeV-electron diffraction”
- 3) 日本光学学会誌：45 巻 408-416 (2016)、「高時空間分解能測定の現状と課題」、谷村克己

## 3. 国際会議招待講演 6 件。

- 1) “Nanoscale Materials Modification by Photon, Ion and Electron Beams (Tutorial talk)”, Materials Research Society, Spring Meeting, April 9, 2012, San Francisco, USA,
- 2) “Nanoscale Materials Modification by Photon, Ion and Electron Beams II”, JSAP-MRS Joint Symposia, September 19, 2013, Kyo-Tanabe, Japan.
- 3) “Time-, energy-, and momentum-resolved distributions of photoinjected hot electrons in Si and GaAs”, International workshop on “Modeling the physical properties of clustering crystal”, November 6, 2013, Lausanne, Switzerland.
- 4) “Ultrafast scattering processes of hot electrons in semiconductors: State-resolved dynamics in energy and momentum spaces with fs-temporal resolution”, International Workshop on the future of ultrafast surface dynamics, April 18, 2015, Erlangen, Germany.
- 5) “Imaging energy-, momentum- and time-resolved distributions of photoinjected hot electrons in semiconductors”, 19<sup>th</sup> international conference on electron dynamics in semiconductors, optoelectronics and nanostructures (EDISON 19), July 2, 2015, Salamanca, Spain.
- 6) “Toward ultrafast electron microscope with femtosecond temporal resolution, atomic-level spatial resolution, and single-shot imaging capability”, International conference on microscopy and microanalysis, August 3, 2015, Portland, OR, USA.

## 4. 国内学会・シンポジウム招待講演 4 件

- 1) 「非平衡電子系の時間分解光電子分光」第 73 回応用物理学会学術講演会、2012 年 9 月 11 日（松山）。
- 2) 「超高速物質構造科学の新展開」、文科省シンポジウム「量子ビーム基盤技術」、2012 年 12 月 3 日、東京
- 3) 「時間分解光電子分光の進展：エネルギー・運動量空間における超高速時間分解分光」、日本物理学会第 70 回年次大会、2015 年 3 月/21 日（東京）
- 4) 「光物性物理学実験の将来」、日本物理学会 2015 年秋季大会 2015 年 9 月 17 日（吹田）

**1. 特別推進研究の研究期間終了後、研究代表者自身の研究がどのように発展したか（続き）****(3) 研究費の取得状況（研究代表者として取得したもののみ）**

科学研究費助成事業

研究種目名：特別推進研究

研究課題名：物質構造科学の新展開：フェムト秒時間分解原子イメージング

研究期間：平成 24-平成 28 年度

研究期間全体の配分額（直接経費）：313,900,000 円

**(4) 特別推進研究の研究成果を背景に生み出された新たな発見・知見**

平成 19 年度から平成 23 年度に渡って展開した特別推進研究「光誘起構造相転移動力学の研究」は、多くの研究成果を発信したと共に、次の課題挑戦への貴重な基盤を創出した。以下に特筆すべき点を記す。

1) 世界最高性能を持つ相対論的超短電子パルスを用いた時間分解電子回折装置の開発は、極めて重要な基礎である。前述したように、構造相転移過程は、核形成・ドメイン成長・ドメイン間相互作用等を主体とする、極めて空間的に非一様な現象である。従って、その本質的理解には、この構造相転移過程（電子的な相転移も含めて）の核形成・ドメイン成長・ドメイン間相互作用を直接観測する手法開発が必須である。世界的にも、この事情が認識され、時間分解原子イメージングを目指した研究が精力的に展開されているが、その多くは、通常の電子顕微鏡の電子銃の部分、レーザーパルスを用いたフォトカソードに置き換えて時間分解原子像を獲得する事を目指した手法である。しかし、この方法では、電子の空間電荷効果と短時間パルス特性、およびイメージングに必要な電子密度の間の矛盾は、容易には解決できていない。更に原理的な問題として、超高速な原子移動過程におけるエルゴード性がある。多数回の積算イメージングによって原子像を得る場合、個々の事象の統計性と観測される原子像との関係決して一意的ではない。

我々が、特別推進研究において開発したシングルショット回折測定を可能にする相対論的電子パルスでは、電子の空間電荷効果は基本的に無視でき、パルス幅 100fs を保持したまま、イメージングに必要な  $10^7$  個の電子を発生できる。もちろん、イメージングに必要な高度の単色性と安定性、および精密な高エネルギー電子のレンズ系の設置等多くの技術的な問題を抱えてはいるが、相対論的電子パルスを用いる事の利点は、研究の新たな展開に必要な時間分解電子顕微鏡創製に向けて、極めて重要な基礎を提供している。

2) 我々が特別推進研究で発展させた時間分解光電子分光法は、従来の分光学的手法と異なり、励起状態を、エネルギー・結晶運動量・時間において分離可能な手法である。半導体中の励起電子動力学は、electronics, optoelectronics の基礎として極めて重要な過程であり、約半世紀に渡って精力的な研究がなされてきた。しかしその大部分は、時間分解分光学的手法による知見の集積であり、運動量空間における直接的知見は皆無であった。我々は、特別推進研究終了後も、継続してこの研究を発展させ、今まで未解決であった、半導体中励起電子が誘起する、①impact ionization, ②intervalley 散乱、③エネルギー緩和過程等において、励起電子の分布変化をエネルギー・結晶運動量・時間の軸上で直接的に検出し、決定的な結論を得ている。これも、特別推進研究の成果を背景に生み出された重要な知見である。

## 2. 特別推進研究の研究成果が他の研究者により活用された状況

特別推進研究の研究成果が他の研究者に活用された状況について、次の(1)、(2)の項目ごとに具体的かつ明確に記述してください。

### (1) 学界への貢献の状況（学術研究へのインパクト及び関連領域のその後の動向、関連領域への関わり等）

#### 1. 超高速構造動力学研究への貢献

本特別推進研究における主要課題の一つは、固体の格子振動周期に対応する  $10^{-13}$  秒 (100fs) の時間分解能を有する電子回折測定装置の開発とそれによる光誘起構造相転移過程の直接観察であった。研究開始当時、SACLA の運用開始に伴う超高速構造動力学研究の大きな流れの中で、時間分解 X 線回折と相補的な時間分解電子回折の研究が世界的規模で展開されつつあった。しかし、時間分解電子回折に対する開発研究は、当時、我が国では欧米に比して 4-5 年の遅れがあり、本研究で初めて本格的な開発研究が始まった。当時（現在でも）欧米で実験的研究の主流となっている数 10 keV のパルス電子ビームを用いた電子回折装置は、以下の 2 つの深刻な諸問題を有していた：

- 1) 空間電荷効果による 1 パルスあたりの発生電子数に対する制限と実現できるパルス幅の限界、
- 2) 物質と低エネルギー電子との強い相互作用による極めて短い回折波の消衰距離 (数 Å) に起因する回折現象の顕著な動力的効果。

1) の問題については、後に RF パルス印加を用いたパルス圧縮の手法が開発され、大きな改良が実現されているが、2) の問題は原理的であり、解決不能である。しかし、多くの論文ではこの点に対する考察がなされておらず、1 回散乱近似に基づく運動学的な概念が誤って適応され、無用な混乱と誤った結果の解釈がなされている。

我々が開発した相対論的電子パルスを用いた回折装置では、上記二つの問題は基本的に解消されている。シングルショットの超短時間回折像測定が可能であると共に、回折における運動学的解析が完全に適応可能な条件下にある。この点は、回折像変化の理論的解析において極めて重要であり、回折強度変化を与える結晶構造変化の理論的シミュレーションは、この条件が満たされて初めて可能になる。この我々の装置開発と実験・理論の共同研究成果は、世界的規模で進展している電子回折を用いた超高速構造動力学研究に、重要な視点・指針を与えた。実際、米国の Brookhaven 国立研究所やスタンフォード大学 SLAC, 更にはドイツのハンブルク大学 (DESY) においても、相対論的電子ビームによる電子回折研究が新たに展開されている。

我々の研究成果は、日本における物質構造動力学研究にも大きなインパクトを与えた。我々の研究成果を契機として、東大と東工大において時間分解電子回折装置が新たに建設され、活発な研究が展開されている。更には、2016 年の物理学会で、「光が切り拓く新しい時空間観測技術」なる合同シンポジウムが開催されるに至り、時間分解顕微鏡、光電子分光、などを併用した超高速現象研究の方向性が議論され、それに基づいて、種々の新たな研究展開が図られている。

また、我々の研究成果には、他学会・領域の研究者も大きな関心を寄せている。後述する招待講演依頼に加え、以下の学会から、それぞれの学会誌に時間分解電子回折に関する総合報告を書くよう依頼を受け、執筆した。

- ① 日本加速器学会誌：7 巻 1-11 (2010), N. Naruse, Y. Murooka, J. Yang, and K. Tanimura, "Ultrafast Time-resolved electron diffraction based on photocathode RF gun generating MeV electron pulses".
- ② レーザー学会誌：43 巻 144-148 (2015), N. Naruse, Y. Giret, J. Yang, and K. Tanimura, "Ultrafast crystalline-structural dynamics by time-resolved MeV-electron diffraction".
- ③ 日本顕微鏡学会誌：43 巻 1-4 (2013), Y. Murooka, N. Naruse, J. Yang and K. Tanimura, "Development of Ultrafast Relativistic-electron diffraction".

#### 2. 運動量分解能を有する時間分解分光研究への貢献

本特別推進研究では、相転移を誘起する固体励起電子系の直接観測を実現する為、フェムト秒時間分解光電子分光手法を開発・適応してきた。通常の分光学においては、全ての運動量情報は基本的にエネルギー軸に投影され、結晶電子系で重要となる運動量空間情報を直接獲得する事は出来ない。これに対して光電子分光は、結晶電子系解析のための主要な測定法であるが、従来までは占有状態に関する知見の獲得に限定されていた。時間分解光電子分光においては、第一の励起パルスで結晶励起電子系を発生させ、特定の時間差において、その励起電子をイオン化し光電子として検出する。これによって、励起電子（通常では非占有状態）の運動量空間上での分布が、フェムト秒時間領域で時間分解的に獲得できる。従って、励起電子系の超高速緩和を、時間・エネルギー・運動量分解的に直接観測する事が可能になる。固体分光学における新たな展開的手法である。

結晶励起電子系の超高速緩和過程は、ここ半世紀に渡って、hot carrier 動力学研究として時間分解分光学的手法を主に用いて研究されてきたが、運動量空間での状態選別の欠如によって、多くに重要な過程が未確定のまま残されてきた。我々が特別推進研究において展開してきた成果は、光誘起相転移をトリガーする励起電子系の追跡のみにとどまらず、エレクトロニクス・オプトエレクトロニクスの基礎過程として重要なキャリア動力学の解明においても、極めて重要な知見を提供する。我々が得た新たな知見は、論文と共に、関連する課題に関する国際会議での招待講演として発表してきたが、当該分野の研究者に大きな影響を与え得たと確信している。

## 2. 特別推進研究の研究成果が他の研究者により活用された状況（続き）

(2) 論文引用状況（上位10報程度を記述してください。）

## 【研究期間中に発表した論文】

No	論文名・著者名・発行年・ページ数等	日本語による簡潔な内容紹介	引用数
1	Formation of $sp^3$ -bonded carbon nanostructures by femtosecond laser excitation of graphite, <u>J. Kanasaki</u> , E. Inami, <u>K. Tanimura</u> , H. Ohnishi, and <u>K. Nasu</u> , Phys. Rev. Lett., <b>102</b> , 087402-1-4 (2009).	グラファイト結晶をフェムト秒光パルスで励起する事によって、電子的な効果を通じてダイヤモンド様構造に変換する事を、走査型トンネル顕微鏡と第一原理計算結果に基づいて明らかにした。この結果は Nature 誌でも紹介され、光誘起相はダイタフナイト相と命名された。	73
2	Ultrafast carrier relaxation in Si studied by time-resolved two-photon photoemission spectroscopy: Intravalley scattering and energy relaxation of hot electrons, T. Ichibayashi and <u>K. Tanimura</u> , Phys. Rev. Lett., <b>102</b> , 087403-1-4 (2009).	光励起によって相転移をトリガーする励起電子系の超高速緩和過程を、時間分解法電子分光の手法を用いて直接的に明らかにした。	32
3	Transmission-electron diffraction with MeV electron pulses, Y. Murooka, N. Naruse, S. Sakakihara, <u>M. Ishimaru</u> , <u>J. Yang</u> , and <u>K. Tanimura</u> , Appl. Phys. Lett. <b>98</b> , 251903-1-3 (2011).	相対論的なエネルギーを有する超短電子パルスを用いて、時間分解能 100fs で時間分解電子回折像を観測できる実験装置を完成させた報告である。この装置は、電子パルスの空間電荷効果を克服し、シングルショットで明瞭な回折像を観測できる。	40
4	Ultrafast relaxation of highly excited electrons in Si: Roles of the L-X intervalley scattering, T. Ichibayashi, S. Tanaka, <u>J. Kanasaki</u> , <u>K. Tanimura</u> , and T. Fauster, Phys. Rev. B <b>84</b> , 235210-1-11 (2011).	最も基本的な半導体である Si を対象とし、通常の分光学的手法では獲得不可能な、結晶運動量空間上での励起電子の状態変化を、時間分解光電子分光の手法を用いて、フェムト秒時間分解能で解明した。	18
5	Theory of photoinduced phase transitions in itinerant electron systems, K. Yonemitsu and <u>K. Nasu</u> , Physics Reports, <b>465</b> , 1-60 (2008).	従来研究されてきた光誘起相転移現象に対する理論的研究に関する総合報告である。有機・無機の物質系に対する概念的特徴・相違を明確にし、それらを総括的に取り扱う為に必要な諸手法を体系的に記述している。	89
6	Nonlinearity in the Dynamics of Photoinduced Nucleation Process, K. Ishida and <u>K. Nasu</u> , Phys. Rev. Lett. <b>100</b> , 116403-1-4 (2008)	光誘起による協力現象の非線形性の起源を解明する為、分子性結晶モデル中の光誘起相転移核の形成過程を厳密な数値計算解の解析を通じて解明し、非線形性の起源を明らかにした。	16
7	Computational nano-materials design for high-TC ferromagnetism in wide-gap magnetic semiconductors <u>H. Katayama-Yoshida</u> , K. Sato, T. Fukushima, M. Toyoda, H. Kizaki, V.A. Dinh, P.H. Dederichs, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, <b>310</b> 2070-2077 (2007).	希薄磁性半導体の転移温度向上に向けた物質設計に、スピノーダル分解の概念を導入し、物質作成時の構造相制御による物性機能の確立に向けた指針を確立した。	53
8	High-pressure properties and phase diagram of boron, K. Shirai, A. Masago, <u>H. Katayama-Yoshida</u> , Phy. Status Solidi, <b>b244</b> , 303-308 (2007)	ホウ素結晶の構造相制御を通じた新規物性発現を実現する為の、理論的研究である。高圧下での溶融特性を解明し、 $\alpha$ 相創製の為の指針を確立した。	30
9	Unexpectedly low thermal conductivity in natural nanostructured bulk $Ga_2Te_3$ , K. Kurosaki, H. Matsumoto, A. Charoenphakdee, S. Yamanaka, <u>M. Ishimaru</u> , and Y. Hirotsu, Appl. Phys. Lett. <b>93</b> , 012101-1-3(2008).	$Ga_2Te_3$ 結晶中で、自発的に生成される 3.5nm 間隔の 2 次元空格子面の存在を高分解能顕微鏡像測定によって明らかにし、極めて低い熱伝導度の起源を解明した。構造相制御による物性特性変化の新たな事例の発見である。	43
10	Direct observations of thermally induced structural changes in amorphous silicon carbide, <u>M. Ishimaru</u> , A. Hirata, M. Naito, In-Tae Bae, Y. Zhang, and W. J. Weber, J. Appl. Phys. <b>104</b> , 033503-1-5 (2008).	アモルファス SiC 中で発生する熱的に誘起される大きな構造緩和（体積現象）現象が、短距離結合秩序の変化に起因する事を、高分解能電子顕微鏡観察によって明らかにした。	23

## 【研究期間終了後に発表した論文】

No	論文名・著者名・発行年・ページ数等	日本語による簡潔な内容紹介	引用数
1	Determination of transient atomic structure of laser-excited materials from time-resolved diffraction data, Y. Giret, N. Naruse, S. L. Daraszewicz, Y. Murooka, J. Yang, D. M. Duffy, A. L. Shluger, and K. Tanimura, Appl. Phys. Lett. <b>103</b> , 253107-1-5 (2013).	本特別推進研究において開発したシングルショット時間分解電子回折測定装置を用いて測定した結果から、超高速な結晶構造変化を微視的に解析可能にする理論解析方法を確立した。	6
2	Structural dynamics of laser-irradiated gold nanofilms, S. L. Daraszewicz, Y. Giret, N. Naruse, Y. Murooka, J. Yang, D. M. Duffy, A. L. Shluger, and K. Tanimura, Phys. Rev. B <b>88</b> , 184101-1-12 (2013).	非可逆相転移の典型例である金属単結晶のレーザー誘導融現象を、シングルショット時間分解電子回折装置による精密測定と、第一原理離村計算と分子動力学計算を融合させた理論的解析を用いて、総合的かつ体系的に研究した。	11
3	Determination of the electron-phonon coupling constant in tungsten, S. L. Daraszewicz, Y. Giret, H. Tanimura, D. M. Duffy, A. L. Shluger, and K. Tanimura, Appl. Phys. Lett. <b>105</b> , 023112-1-3 (2014)	フェムト秒時間分解反射分光測定と第一原理計算手法を合わせ、タングステン単結晶の電子格子結合定数を決定した。	8
4	Nonthermal solid-to-solid phase transitions in tungsten, Y. Giret, S. L. Daraszewicz, D. M. Duffy, A. L. Shluger, and K. Tanimura, Phys. Rev. B <b>90</b> , 094103-1-7 (2014)	第一原理計算に基づき、レーザーで強励起されたタングステン結晶が、励起密度に依存する原子間ポテンシャル変化によって non-thermal force によって、非熱的に構造相転移する事を示した。	9
5	State-resolved ultrafast dynamics of impact ionization in InSb, H. Tanimura, J. Kanasaki, and K. Tanimura, Sci. Rep. <b>4</b> , 6849-1-4 (2014).	狭ギャップ半導体の典型例である InSb 結晶中の励起電子の impact ionization 過程を、時間・エネルギー・運動量を分解して検出し、遷移速度を初めて実験的に決定した。	3
6	Imaging energy-, momentum-, and time-resolved distributions of photoinjected hot electrons in GaAs, J. Kanasaki, H. Tanimura, and K. Tanimura, Phys. Rev. Lett. <b>113</b> , 237401 (2014).	時間分解光電子分光の手法を用いて、典型的半導体である GaAs 中の励起電子の超高速分布変化を、エネルギー・運動量空間中で時間分解的にイメージ化する事に成功した。	11
7	Ultrafast scattering processes of hot electrons in InSb studied by time- and angle-resolved photoemission spectroscopy, H. Tanimura, J. Kanasaki, and K. Tanimura, Phys. Rev. B <b>91</b> , 045201 (2015).	時間分解光電子分光の手法を用いて、狭ギャップ半導体の典型例である InSb 結晶中の励起電子の超高速分布変化を、エネルギー・運動量空間中で時間分解的に追跡し、impact ionization 過程と intervalley 散乱過程の競合を明らかにした。	5
8	Dynamical simulations of an electronically induced solid-solid phase transformation in tungsten, S. T. Murphy, S. L. Daraszewicz, Y. Giret, M. Watkins, A. L. Shluger, K. Tanimura, and D. M. Duffy, Phys. Rev. B <b>92</b> , 134110-1-9 (2015).	第一原理計算と分子動力学手法を融合させ、レーザー励起されたタングステン結晶の非熱的相転移過程の動力学を解明した。	5
9	Formation of hot-electron ensembles quasiequilibrated in momentum space by ultrafast momentum scattering of highly excited hot electrons photoinjected into the G valley of GaAs, H. Tanimura, J. Kanasaki, K. Tanimura, J. Sjakste, N. Vast, M. Calandra, and F. Mauri, Phys. Rev. B <b>93</b> , 161203(R)-1-5 (2016).	時間分解光電子分光による GaAs 中の励起電子のエネルギー・運動量空間中での超高速分布変化の直接的知見と、第一原理計算に基づく遷移速度計算を融合し、半導体中での高いエネルギーを持つ励起電子が、運動量空間でのみ平衡化された準平衡電子集団を形成する事を明らかにした。	2
10	Initial atomic motion immediately following femtosecond-laser excitation in phase-change materials, E. Matsubara, S. Okada, T. Ichitsubo, T. Kawaguchi, A. Hirata, P. F. Guan, K. Tokuda, K. Tanimura, T. Matsunaga, M.W. Chen, and N. Yamada, Phys. Rev. Lett. <b>117</b> , 135501-1-6 (2016)	次世代の超高速・低エネルギーの記憶素子として注目されている相変化記憶材料における光励起直後の原子構造変化を、時間分解 X線回折に基づいて決定した。	1

### 3. その他、効果・効用等の評価に関する情報

次の(1)、(2)の項目ごとに、該当する内容について具体的かつ明確に記述してください。

#### (1) 研究成果の社会への還元状況（社会への還元の程度、内容、実用化の有無は問いません。）

本特別推進研究の研究成果はすべて、論文発表、国際・国内会議発表を通じて関連研究者に広く還元すると共に、ホームページを通じての社会還元を図った。

この中で、関連領域への情報発信については特に留意した。本研究内容の意義と重要性、および装置開発上の基盤技術の広さに鑑みて、他の学会・学問領域に対して研究成果と装置技術に関する知見を発信する事は、日本全体の科学研究の視点を広げ、更には共同・協力関係を拡大する事に貢献できると考えたからである。代表者および分担者の主たる活動場所は、日本物理学会が中心であるが、幸いにして、他学会・領域の研究者も我々の成果に対して強い関心を寄せており、複数の学会・領域から招待講演を依頼された。研究期間終了後のいくつかも含めて、代表的な例としては、

- 1) 第30回表面科学学術講演会・第51回真空に関する連合講演会合同講演会（2010年11月6日 大阪）  
招待講演題目「フェムト秒時間分解透過型電子回折法による構造相転移ダイナミクス」
- 2) 日本顕微鏡学会第67回学術講演会（2011年5月17日 福岡）  
招待講演題目「光誘起相転移の原子・電子ダイナミクス」
- 3) 新学術領域「半導体における動的相関電子系の光科学」第6回シンポジウム（2012年1月5日 宇治）  
招待講演題目「フェムト秒時間分解光電子分光法による半導体結晶中の光誘起キャリアの超高速動力学」
- 4) 文部科学省シンポジウム「量子ビーム基盤技術」（2012年12月03日 東京）  
招待講演題目「超高速物質構造科学の新展開」
- 5) 第73回応用物理学会学術講演会（2012年9月12日 松山）  
招待講演題目「非平衡電子系の時間分解光電子分光」

又、日本加速器学会、レーザー学会、日本顕微鏡学会には、それぞれの会誌に解説執筆を依頼され執筆した。これらの情報発信活動によって、関連領域の今後の研究展開に重要な指針を与え、更には、成果の社会への還元に対する責任の一端を果たしたものと信じている。



**3. その他、効果・効用等の評価に関する情報（続き）**

(2) 研究計画に関与した若手研究者の成長の状況（助教やポスドク等の研究終了後の動向を記述してください。）

**1. ポスドクとして雇用していた若手研究者の成長**

- 1) 研究終了時 大阪大学産業科学研究所助教 → 現在 滋賀医科大学准教授
- 2) 研究終了時 大阪大学産業科学研究所ポスドク → 現在 連合王国 Liverpool 大学 Senior Lecturer
- 3) 研究終了時 高エネルギー加速器研究機構ポスドク → 現在 鶴岡工業高等専門学校 准教授
- 4) 研究終了時 高エネルギー加速器研究機構ポスドク → 現在 金沢工業大学 准教授

**2. 教授への昇格**

- 1) 研究終了時 大阪大学産業科学研究所准教授 → 現在 九州工業大学教授