

研究種目：特別推進研究  
研究期間：2007～2011  
課題番号：19001002  
研究課題名（和文） 光誘起構造相転移動力学の研究  
研究課題名（英文） Dynamical studies of photoinduced structural phase transitions

## 研究代表者

谷村 克己 (TANIMURA KATSUMI)  
大阪大学・産業科学研究所・教授  
研究者番号：00135328

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性 I

キーワード：光誘起相転移、フェムト秒分光、時間分解電子線回折、STM、第一原理計算

## 1. 研究計画の概要

巨視的量子多体系としての固体が示す協力現象の最も典型的な事象である相転移において、構造相転移では、電子系と格子系との相互作用が協力的駆動力として作用し、格子構造・対称性・電子状態が異なる2つの状態が巨視的スケールで劇的に転移する。

本研究においては、超短光パルスを構造相転移のトリガとする光誘起構造相転移の相転移動力学を、

- 1) 種々の光誘起構造相転移現象の中から典型例を対象として厳選し、
  - 2) 極限的時間・空間分解能を有する実験手法を用いて、励起電子系の超高速緩和現象と格子系の超高速動力学の双方に対する直接的な知見を獲得し、
  - 3) 高度な理論的研究による協力的動力学解析を融合させ、
- て研究し、相転移機構の微視的・統一的理解を達成する事を目的とする。これによって、凝縮系科学に新たなパラダイムを切り開く。

## 2. 研究の進捗状況

研究遂行においては以下4つの分担課題：

- ① 励起状態の超高速緩和過程の研究
  - ② 時間分解電子線回折法による相転移動力学の研究
  - ③ 光誘起相の原子構造の研究
  - ④ 光誘起構造相転移動力学の理論的研究
- を設定し、有機的に研究を進めている。以下、代表的成果を中心にして、3年間の研究進捗状況についてまとめる。

- (1) 時間分解2光子光電子分光による励起電子系超高速緩和過程の直接観察  
構造相転移をトリガする電子系励起状態

の超高速緩和過程の研究（上記課題①）において、従来の光学的手法による間接的知見による制限からの脱却を目指し、励起電子系動力学を運動量・エネルギー空間で直接的にプローブ可能な時間分解2光子光電子分光法を適用して、Si結晶伝導帯に光励起された hot electron の超高速緩和過程を直接観察する事に成功した。その結果、励起後40fsで電子系のみ準平衡状態が形成されるが、この過程で50%のエネルギーが超高速で格子系に伝達されること、その後、240fsの時定数で格子系との熱平衡が達成される事が解明され、この手法の有用性が立証された。この成果は、世界の代表的な物理学系学術誌である Physical Review Letters 誌に発表した。この手法を駆使して、光誘起相転移に固有な初期条件敏感性の起源を解明する。

- (2) グラファイトの光誘起相転移によって発生する新規炭素相“Diaphite”の発見

STMとトンネル分光手法を併用した系統的研究によって、グラファイト上の光誘起相構造に対して明確な原子構造と電子状態に関する知見を得ることに成功した。この実験的研究と並行して大規模原子クラスターに対する全エネルギー計算に基づく理論的研究を進め、光誘起構造相が、熱力学的には到達出来ない第3の炭素凝縮構造(“Diaphite”相と命名)である事を明らかにした。この成果も Physical Review Letters 誌に発表した。

この成果のインパクトは大きく、世界科学界の代表的な学術情報誌でもある Nature 誌の Research Highlight 欄にも取り上げられて、“Diaphite Domain”として紹介されている。

- (3) 世界最高性能のフェムト秒時間分解透過電子線回折装置の開発

本研究における主要課題の一つは、無機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る。この種の装置開発は、我が国では欧米に比して4-5年の遅れがあり、本研究において初めて、本格的な開発研究が始まった。研究開始後3年間で、我々は、世界に先駆けて、フェムト秒時間分解能を有する透過電子線回折装置を開発した。

装置は、フェムト秒レーザーフォトカソード部、超高真空中での電子回折測定を可能にする電子レンズを含む回折部、微弱な回折ビーム強度を高感度に検出する検出部、から構成されている。必要な諸特性を満足する装置製作経験は、我が国の企業には皆無であり、本計画関連研究者の経験と英知を結集して独自に開発を続け、完成させたものである。

装置性能は、時間分解能 90 fs、パルスあたりの電子数  $>10^7$  個、 $\Delta E/E < 10^{-4}$  であり、厚さ  $1\mu\text{m}$  以下の試料に対して、極めて明瞭な回折パターンが測定できる。現在続けている検出装置の超高感度化が完成すれば、世界初のシングルショット時間分解回折測定も可能になる。この特性は、現時点では世界最高性能であり、この装置の完成自体も世界に先駆けた重要な成果である。更に、この完成によってフェムト秒時間分解電子顕微鏡実現への道が大きく拓かれた。今後この装置を用いた構造相転移動力学の研究を推進する。

### 3. 現在までの達成度

①当初の計画以上に進展している。

(理由)

本研究では、光誘起構造相転移と密接に関連する他の光誘起構造変化現象や、固体電子励起状態の超高速緩和現象、熱力学的な構造相転移過程の直接的原子像観察による研究、等を、本研究の目的達成に極めて重要な学問的な基礎を提供する「基礎研究」と位置付け、同時並行的に遂行してきた。研究開始以後3年間で、上記基礎研究も含め、本計画代表者・分担者によって発表された学術論文数は65報であり、その大部分が、Physical Review Letters 誌をはじめ当該分野の世界的な学術雑誌に発表されている。また、この特別推進研究に直接に関連する内容での本計画関連研究者の国際・国内学会学術集会の招待講演数は、3年間で28であり、研究進展と共にその数が増加している。

これらの数的な成果のみならず、3年間の研究を通じて、本研究の目的達成のkeyともなる、①熱力学的には到達出来ない炭素凝縮相 "Diaphite" の発見 (Phys. Lev. Lett.

102(2009) 087402)、②時間分解光電子分光法による直接的電子系超高速緩和過程の研究 (Phys. Lev. Lett. 102 (2009), 087403)、③光誘起グラファイト層間結合発生機構の理論的解明 (Phys. Rev. B 80 (2009) 235420)、④世界最高性能を有する時間分解透過電子線回折装置の開発、等の諸成果を達成しており、今後の研究推進によって、当初の予定以上の成果が見込まれる事は確実である。

### 4. 今後の研究の推進方策

研究開始以後、最大の開発課題であったフェムト秒時間分解電子線回折測定装置も完成させ、光誘起構造相転移の超高速変化の全貌を、電子系および格子系ともに直接的な知見に立脚して実験的に研究できる実験研究体制が整備された。更に理論的にも、多くの計算技術上の諸問題を克服し、多くの重要な結果を達成できる体制が整っている。今後の推進方策としては、今までの研究のペースと質を維持し、更に発展させる事はもちろんであるが、特に、次の2点に注力して研究を推進する。

1) 本研究で開発した特徴ある世界最高性能の装置を駆使し、新たな領域を開拓していくための光誘起構造相転移動力学の研究。

2) 新たな概念形成も含め、異なる結合様式変換によって発生する光誘起構造相転移動力学に関する統一理論構築への研究。

以上、今後の計画期間中、代表者・分担者の有機的協力の元に今まで以上の成果を達成すべき研究を遂行する。

### 5. 代表的な研究成果

[雑誌論文] (計 65 件)

① J. Kanasaki, E. Inami, K. Tanimura, H. Ohnishi, and K. Nasu, "Formation of  $\text{sp}^3$ -bonded carbon nanostructures by femtosecond laser excitation of graphite" Phys. Rev. Lett. 102 (2009) 087402-1-4. 査読有

② T. Ichibayashi and K. Tanimura, "Ultrafast carrier relaxation in Si studied by time-resolved two-photon photoemission Spectroscopy" Phys. Rev. Lett. 102 (2009) 087403-1-4. 査読有

③ J. Yang, K. Kan, N. Naruse, Y. Yoshida, K. Tanimura, and J. Urakawa, "100-femto-second MeV electron source for ultrafast electron diffraction" Radiat. Phys. Chem., 78 (2009) 1106-1111. 査読有 [学会発表] (計 29 件)

[その他]

ホームページ

大阪大学産業科学研究所谷村研究室

<http://www.sanken.osaka-u.ac.jp/labs/aem/>