

科学研究費助成事業（特別推進研究）公表用資料
〔研究進捗評価用〕

平成 24 年度採択分

平成 27 年 5 月 29 日現在

研究課題名（和文） **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**
研究課題名（英文） **Innovation of structural materials science:
Femtosecond time-resolved atomic imaging**
課題番号：2400006
研究代表者
谷村 克己 (TANIMURA KATSUMI)
大阪大学・超高压電子顕微鏡センター・特任教授



研究の概要： 10^{-13} 秒の時間分解能と原子レベルの空間分解能を併せ持つ時間分解原子イメージング装置を開発し、それを駆使して、超高速で進展する固体の光励起下で発生する光誘起構造相転移動力学過程を研究する。それによって、空間的に非一様な協力的相互作用が顕在化する構造相転移過程における核形成・ドメイン動力学・新規秩序形成過程を微視的に解明する。

研 究 分 野：固体物理学、物質構造科学

キ ー ワ ー ド：光物性、光誘起相転移、超短時間分光、時間分解電子顕微鏡

1. 研究開始当初の背景

(1) 物質の機能はその構造と密接不可分の関係にあり、構造制御を通じた新規機能の開拓と創製は、物質科学研究の最大の目的の一つである。20 世紀において物質構造科学研究は大きく発展し、平衡状態における物質構造が原子レベル分解能で解明される一方、分光学的手法を駆使して構造変化現象が 10^{-13} 秒の領域で獲得できるまでに至っている。

(2) 今世紀に入り、構造科学研究は更に大きな飛躍への幕を開けた。20 世紀の限界が打破され、超高速で変化する非平衡過程における物質構造が時間分解的に決定可能な段階に突入しつつある。

2. 研究の目的

本研究は、この物質構造科学の一大転換期に、世界に先駆けて、非可逆過程にも適応可能な 10^{-13} 秒の時間分解能を有する時間分解原子イメージング手法を開発し、それを駆使した研究を推進して、物質構造科学研究に新たなブレークスルーを切り拓く事を目的とする。

3. 研究の方法

(1) 時間分解原子イメージング装置の開発
① 現有の 10^{-13} 秒の時間分解能を有する世界最高性能の透過電子回折装置を、原子レベルの空間分解能を併せ持つ、単一パルスで原子イメージングが可能な装置へ転生させる。

② 原子分解能を有する電子顕微鏡に、 10^{-13} 秒の時間分解能を付与し、可逆的過程に適応可能な時間分解電子顕微鏡を開発する。

(2) これらの装置を駆使し、固体の光励起下で発生する、空間的に非一様な協力的相互

作用が顕在化する代表的な光誘起構造相転移における核形成・ドメイン動力学・新規秩序形成過程等の超高速構造秩序変遷過程に対して研究を行い、多体系の構造動力学を直接的知見に基づいて微視的に解明する。

(3) これらの実験的研究とともに、非平衡・非断熱的な構造変遷過程に対して、先端的手法を用いた理論的研究を推進し、統一的理解を確立する。

4. これまでの成果

(1) 原子イメージング装置の開発

我々が開発した時間分解透過型電子回折装置を原子イメージング装置に転生させるためには、電子ビームの高精度な安定化・単色化という極めて困難な技術的課題を克服する必要がある。その為に、電子銃機能を高度化させるための専用電源の設計・試作とクライストロンの導入等の装置開発を精力的に推進してきた。開発過程に付随する種々のトラブルや困難な諸点を克服し、RF 増幅電源の安定性として $\pm 2 \times 10^{-5}$ の世界最高性能を実現した。この超安定化された電源を用い、現在、単一電子パルスのエネルギー単色性として、 7×10^{-4} eV を実現している。この電子銃の後段への α マグネット分光器の挿入によって、イメージングに必要な 10^{-5} eV のエネルギー単色性が確実に実現可能である。

(2) 時間分解電子顕微鏡の開発

定常電流測定で空間分解能 2 Å のを示す顕微鏡に対して、電子銃部のフェムト秒化のための開発・最適化作業を、光電子銃材料開発とその特性評価研究を含めて展開した。その結果、フェムト秒光電子パルスプローブ（パルスあたりの光電子は 10 個以下）条件下で、

空間分解能 6Å を達成した。現在、この装置を用い、可逆的光誘起構造相転移における核形成やドメイン間相互作用、励起下で発生する新規構造秩序を、実空間の原子イメージング測定を通じて直接的に解明する為の研究を展開している。

(3) 時間分解電子回折像の modeling による原子イメージング

電子回折像はX線回折より広い運動量空間の情報と同時に獲得できる。従って、各回折線の強度・線幅等の徹底した解析によって実空間イメージを構成する事が可能である。本研究では、理論的取り扱いが可能な比較的簡単な系（金属単結晶）のレーザー励起固液相転移過程に対して、フェムト秒時間分解回折実験と第一原理計算と分子動力学法を用い

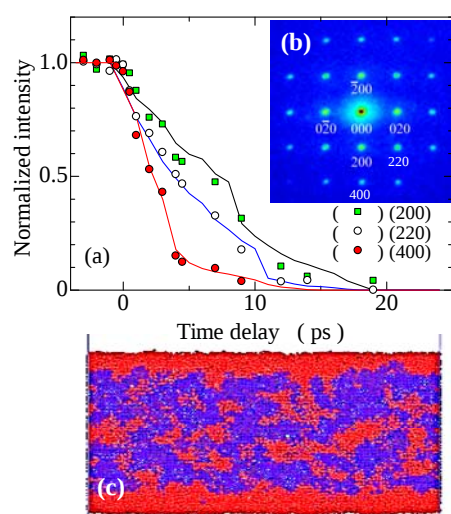


図 1 金単結晶の固液相転移における回折強度変化と理論解析結果の比較 (c)は可視化された原子構造

た構造解析計算を融合させ、「回折像変化をもたらし原子構造変化の構成」の為の研究を行った。(発表論文 1)。その結果の 1 例を上図に示す。図(a)の実線は、理論解析結果であるが、種々の次数の回折強度の励起後の時間変化を定量的に記述している。図(c)は、励起後 10 ps における分子動力学計算による金単結晶の原子構造であり、赤の領域が熔融領域を表しており、熔融核が結晶内部で発生する均一熔融が発生している。この成果は、電子回折実験結果を理論的に解析し、結晶構造の超高速時間変化を原子レベルで可視化した世界初の成果である。

(4) 結晶励起電子系のエネルギー・運動量空間における時間分解イメージング

光誘起構造変化は、励起電子系の分布変化が誘起する。従って、電子系超高速緩和過程の解明は、本研究の重要な構成部分をなす。本研究では、時間分解光電子分光手法を駆使して、今まで間接的にのみ推察されていた励起電子分布変化程を、non-thermal melting 現

象を示す半導体結晶中に対して、エネルギー・運動量空間における超高速時間分解測定を通じて直接的に解明した(発表論文 2, 3)。本研究の成果のインパクトは極めて大きく、超高速構造科学のみならず、過去 4 半世紀において精力的な研究が展開されてきた半導体物理・科学分野に対しても大きな影響を与え、その波及効果は、光エネルギー変換素子の高効率化を含む半導体デバイス開発、ナノ機能開拓研究、等、広範囲に及んでいる。

5. 今後の計画

(1) 目的達成のために装置開発は、計画通り着実に進展している。可逆過程に適応できる時間分解電子顕微鏡装置は、すでに作動状態にあり、非可逆過程に対して適応可能な単一パルス時間分解原子イメージング装置も、完成まであと一步の段階にある。

(2) 開発を進めてきたフェムト秒原子イメージング装置・電子回折装置を駆使して、今後、光励起によって固体中で発生する典型的な超高速構造変化・相転移現象を、直接的な知見に立脚して系統的に解明する。現在、

- ①Si, GaAs 等の半導体結晶中の non-thermal melting 過程の超高速構造動力学
- ②W, Fe 等の bcc 金属の non-thermal force による構造相転移動力学
- ③Graphite の光誘起構造相転移、
- ④VO₂ 結晶における金属 - 絶縁体相転移の超高速構造動力学
- ⑤CDW 物質系の光誘起構造相転移動力学
- ⑥相変化記憶材料 Ge₂Sb₂Te₅ におけるフェムト秒レーザー励起構造相変化動力学

等の研究を展開している。これらの研究を通じて、空間的に非一様な協力的相互作用が顕在化する代表的な光誘起構造相転移における核形成・ドメイン動力学・新規秩序形成過程を微視的に解明する。

6. これまでの発表論文等 (受賞等も含む)

- (1) S. L. Daraszewicz, Y. Giret, N. Naruse, Y. Murooka, J. Yang, D. M. Duffy, A. L. Shluger, and K. Tanimura, "Structural dynamics of laser-irradiated gold nanofilms", Phys. Rev. B **88**, 184101-1-12 (2013).
- (2) J. Kanasaki, H. Tanimura, and K. Tanimura, "Imaging energy-, momentum-, and time-resolved distributions of photojected hot electrons in GaAs", Phys. Rev. Lett. **113**, 237401-1-5 (2014).
- (3) H. Tanimura, J. Kanasaki, and K. Tanimura, "State-resolved ultrafast dynamics of impact ionization in InSb", Sci. Rep. **4**, 6849-1-4 (2014).

ホームページ等

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