



TITLE:

Ultrafast X-ray diffraction with an XFEL:
Probing transient structures of
nanoparticles(Abstract_要旨)

AUTHOR(S):

Niozu, Akinobu

CITATION:

Niozu, Akinobu. Ultrafast X-ray diffraction with an XFEL: Probing transient structures of nanoparticles. 京都大学, 2021, 博士(理学)

ISSUE DATE:

2021-03-23

URL:

<https://doi.org/10.14989/doctor.k22990>

RIGHT:

許諾条件により全文は2022-01-13に公開; 「巻末追加」に出典情報を記載

京都大学	博士 (理学)	氏名	仁王頭 明伸
論文題目	Ultrafast X-ray diffraction with an XFEL: Probing transient structures of nanoparticles (XFELを利用した超高速X線回折:ナノ粒子の過渡的構造の観測)		
<p>(論文内容の要旨)</p> <p>物質の性質を理解する上で、物質を形作る原子や分子の配列に関する情報は最も基本的な性質であり、20 世紀初頭以降、X 線を用いた構造解析法は物質の原子スケールの構造情報を得るための手法として広く利用されてきた。近年、X 線自由電子レーザー (XFEL) と呼ばれる新規な X 線光源の開発により、高強度、高コヒーレンスかつ短パルス (~千兆分の 1 秒程度) という特長を有する X 線パルスが利用可能となり、X 線イメージングを用いた単粒子構造解析や、X 線非線形光学などの新しい研究領域が開拓されつつある。特に、XFEL の短パルス性を利用することで、これまで観測が困難であった状態変化の途上にある物質の過渡的な構造の観測が期待される。単一パルスにより X 線回折像を得られる XFEL 実験では、XFEL のコヒーレンスに起因する干渉 (スペックル) パターンから従来の手法を超えた詳細な構造情報が得られると期待される一方で、アンサンブル平均・時間平均を経ない回折像データの取り扱いに関しては XFEL の特長を活かす解析手法の開発が重要な課題となっている。本研究では、国内の XFEL 施設である SACLA において、ナノ粒子の超高速 X 線回折実験を実施し、XFEL の短パルス性を活かした、過渡的な構造の観測手法の確立を目指した。</p> <p>申請者は上記の背景および動機に基づき、キセノン (Xe) ナノ粒子を試料とした実験を行い、①結晶化直後におけるナノ粒子の構造とその起源、②強力なレーザー照射に伴うナノ粒子のプラズマ化に伴う構造変化の 2 つのテーマについて研究を行った。</p> <p>1 つ目のテーマでは、Xe ナノ粒子が結晶化する際の構造変化ダイナミクスの観測を、XFEL を用いる超高速 X 線回折によって行った。真空中へ Xe ガスを噴出すると、断熱膨張による冷却により試料ガスはごく短時間で過冷却状態に至り、そこからの結晶核生成を経てナノ粒子が生成してゆくと考えられる。ファンデルワールス力によって凝集する Xe は、バルク固体では面心立方構造を取ることが知られているが、小さなナノ粒子の安定構造は面心立方構造とは異なることが知られており、粒子成長とともに面心立方構造へ至る経路は自明ではない。申請者は XFEL を用いる単粒子 X 線回折実験で得られた回折像の解析から、粒子生成後、数百マイクロ秒という早い時間における Xe ナノ粒子において、安定な面心立方構造だけでなく、積層欠陥を多数含むランダム六方最密充填構造と呼ばれる準安定な構造が存在していることを明らかにするとともに、この構造が結晶成長の kinetics に基づくことを示した。</p> <p>2 つ目のテーマでは近赤外 (NIR) レーザーと XFEL を用いる時分割の X 線回折実験を行い NIR レーザーパルス (波長 800nm、パルス幅 ~30 fs) 照射後の Xe ナノ粒子中の結晶構造の変化を、SACLA から供給される硬 X 線パルス (10 keV、パルス幅 ~10 fs、強度 ~4×10^{17} W/cm²) を用いて観測した。NIR レーザーパルスの強度を系統的に変えることで、NIR レーザー照射によって生成するプラズマの状態を制御し、NIR レーザー照射後に Xe ナノ粒子中の結晶構造が消失する時間スケールが生成したプラズマ状態を特徴づけるプラズマ音速で支配されることを明らかにした。</p>			

(続紙 2)

(論文審査の結果の要旨)

申請論文は、X線自由電子レーザー (XFEL) を用いた超高速X線回折の手法の開発と、これを用いた単一ナノ粒子の過渡的な構造変化についての実験的研究の成果を報告したものである。XFELの登場により高強度かつ短パルスなX線レーザーが実現され、単一のXFELによってナノスケールの試料の構造を粒子ごとに観測することが可能となっている。申請者は特に、高速な変化の途上にある物質の構造や反応中の物質の構造変化を追跡することがXFELの超高速X線回折により実現できる事に着目し、XFELの特性を活かした研究として、①生成後マイクロ秒程度で起こるナノ粒子中における構造変化の観測および、②高強度パルス光照射で起こるフェムト秒スケールの超高速な構造変化の観測という、2つの研究課題について報告した。

国内のXFEL施設であるSACLAで行われた、Xeナノ粒子を標的とした一連の実験の結果を報告している。実験は海外の研究者を含む多数の共同研究者の協力のもとで行われたが、申請者はその中でも主導的な役割を果たしており、特に、実験において試料となるナノ粒子生成装置の操作と、数十万枚におよぶ画像データからなる膨大な実験データの処理を申請者が担当し、更にデータ解析から議論に及ぶ研究の取りまとめにおいても主たる役割を果たした。

得られた主たる成果は以下の通りである。第一の研究では、特に単一のXFELパルスにより得られるX線回折像に着目し、その中にストリーク像と呼ばれる特徴的なイメージが存在すること、これらイメージの強度プロファイルにXeナノ粒子の積層欠陥の情報に由来する干渉像として現れることを見出した。単一イメージの解析に加えて、得られた多数の画像を解析する新たな手法を考案し、ナノ粒子に対する3次元の構造因子を導出できることを示した。観測に基づき、XFELの干渉性を考慮した数値計算実験を行うことで、単一ナノ粒子中にバルクの安定相である面心立方構造と、準安定構造であるランダム六方最密充填構造が共存していることを明らかにした。さらに観測された共存状態がナノ粒子の結晶成長のkineticsに由来する興味深い状態であることを示した。

第二の研究では、高強度の近赤外 (NIR) レーザーパルスの照射によるXeナノ粒子中の結晶構造の変化について時分割計測を行った。照射するNIRレーザー強度を系統的に変えることで生成するプラズマ状態を制御し、プラズマ化の後に起こる構造変化の物理過程を解明することを目指した。申請者は実験で得られた時分割回折像データの解析手法を開発するとともに、プラズマから放出されるイオンの運動エネルギーから重要な物理量であるプラズマ音速を推定する手法を考案した。これらを適用することで、プラズマ中で結晶構造が喪失する時間スケールとプラズマ音速の間に成り立つ重要な関係式を見出した。実験データをレーザー誘起プラズマについての理論と比較検討することで、得られた結果がレーザーと物質の相互作用を理解する上で基本的な情報を与える観測結果である事を示した。

よって、本論文は博士 (理学) の学位論文として価値あるものと認める。また、令和3年1月20日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。

要旨公表可能日： 年 月 日以降