

物質のフェムト秒物理・化学現象解析のためのX線散乱計測技術

京大工 松原英一郎

1. サブグループの構成

- (1) 超短パルス・コヒーレントX線を用いたイメージング技術開発 (京大工 松原英一郎・理研播磨研 西野吉則)
- (2) 試料を時間・空間領域で分光学的に監視するフェムト秒時間分解顕微鏡の開発 (筑波大数物 守友浩・理研播磨研 田中義人)
- (3) 微小磁性体内の磁化ベクトル分布解析技術の開発 (東北大 角田匡清・JASRI 中村哲也、鈴木基寛・富士通 淡路直樹)
- (4) 吸着反応状態での回折データのその場・高速時間分解測定技術と吸着現象の可視化技術 (京大工 北川進・理研播磨研 高田 昌樹)



2. ナノマテリアルグループ開発主要装置概要

(1) コヒーレント回折イメージング基盤装置 一式

X線自由電子レーザーからのコヒーレント光を用いた透過ジオメトリーでの前方スペックル散乱強度測定と回折角度 ($2\theta \leq 30^\circ$) の反射ジオメトリーでの表面スペックル散乱および回折スペックル散乱測定に対応でき、ビームラインに直結して超高真空下での測定を想定し設計されている。

(2) 光励起系反射率等観察用フェムト秒顕微鏡システム 一式

試料表面上の可視光反射率分布をフェムト秒の時間分解能でとらえる顕微鏡筒およびその周辺装置の開発を行っている。

(3) 磁気スペックル測定用装置 一式

本装置は、高真空チャンバー内に精密2軸ゴニオメーターを備えたX線回折測定装置である。ブラッグ回折配置での電荷スペックルおよび磁気スペックル実験、透過配置でのホログラフィー実験、コヒーレント回折イメージング実験に用いる。真空を破ることなく、回折角 $2\theta = -3^\circ \sim 77^\circ$ の範囲で CCD 検出器を無段階に走査可能であり、大気によるX線の散乱や減衰が無い条件で試料からの回折スペックル像を測定できる。磁場印加用の電磁石、ナノメートル精度での精密試料位置決め機構を備える。

(2) 光励起系反射率等観察用フェムト秒顕微鏡システム



・フェムト秒時間分解顕微鏡筒

1. 可視・近赤外光 ($\lambda=400 \text{ nm}, 800 \text{ nm}$) で試料監視
2. 時間分解能 200 fs (XFEL光とのjitter: 680 fs、装置(2)による)
3. 空間分解能 $3 \mu\text{m} \sim 5 \mu\text{m}$



(3) 磁気スペックル測定用装置

概要: 高真空チャンバー内に水平振り回折計を備えたX線回折測定装置。スペックル実験のほか、透過配置ホログラフィー、小角散乱実験にも適する。
特徴: $-3 \sim +77^\circ$ の角度範囲で無段階走査可能な中空真空アームを備え、大気による散乱・減衰が無い条件で試料からの回折X線を二次元検出可能。
付属: 磁場印加装置 ($>0.2 \text{ T}$)、高速ピエゾシャッター ($<4 \text{ msec}$)、真空内四象限スリット、PINフォトダイオード、蛍光投影型冷却CCDなど。

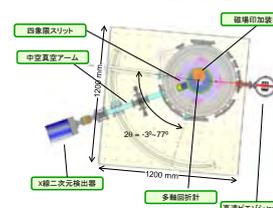


図1 装置各部名称 (上面図)



図2 装置外観 (3D-CAD)

3. ナノマテリアルグループのXFELに向けた研究進捗状況

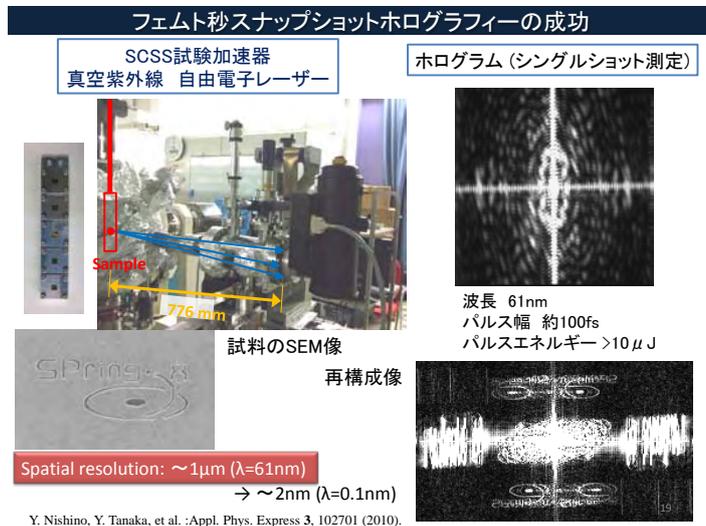
(1) コヒーレント光イメージング

この研究では、以下のテーマについて研究を行ってきた。

- 1) 位置分解能の追求 : 位相反復法を用いたコヒーレント光イメージング
- 2) 時間分解能の追求

- 超短パルスイメージング

フーリエ変換ホログラフィー
(散乱強度と分解能とのトレード
オフ) および HERALD 法 (散乱強度
と分解能の両立) の 2 種類のフーリ
エ変換ホログラフィーについて、
XFEL からのシングルパルスでの測
定の実現に向けた研究を行ってき
た。ここでの大きな成果は、XFEL で
の測定のシミュレーションとして、
極紫外自由電子レーザーを用いて、
シングルパルスでのスペックルの測定と、ヘラルド法での結像に成功したいことで、XFEL での超短パルスイメージングへの道を開いた。

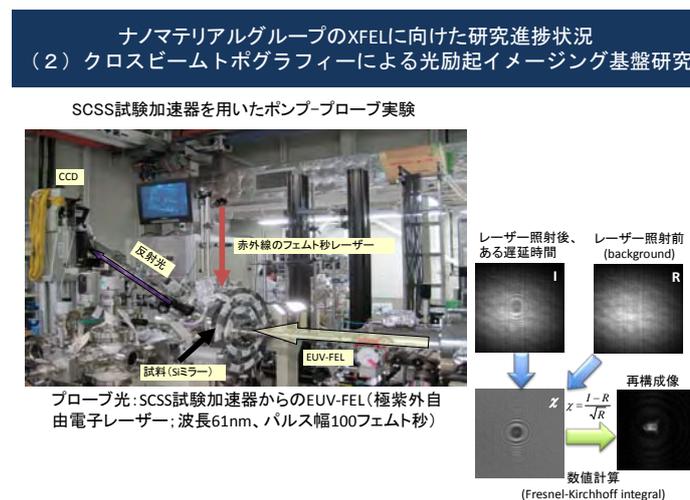


- クロスビームトポグラフィーを用いた超高速イメージング

超短パルスイメージングよりさらに高速な物質表面での電子密度変化を捉えるための基礎技術開発であり、インラインホログラフィーの確立を主要なテーマとした。

(2) クロスビームトポグラフィーによる光励起イメージング基盤研究

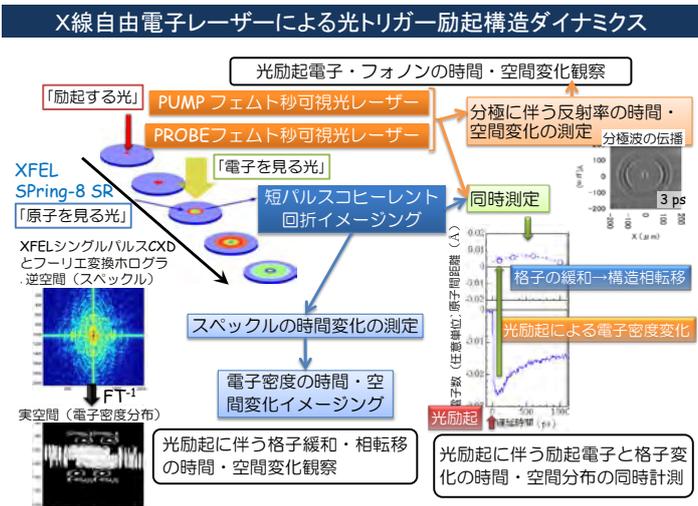
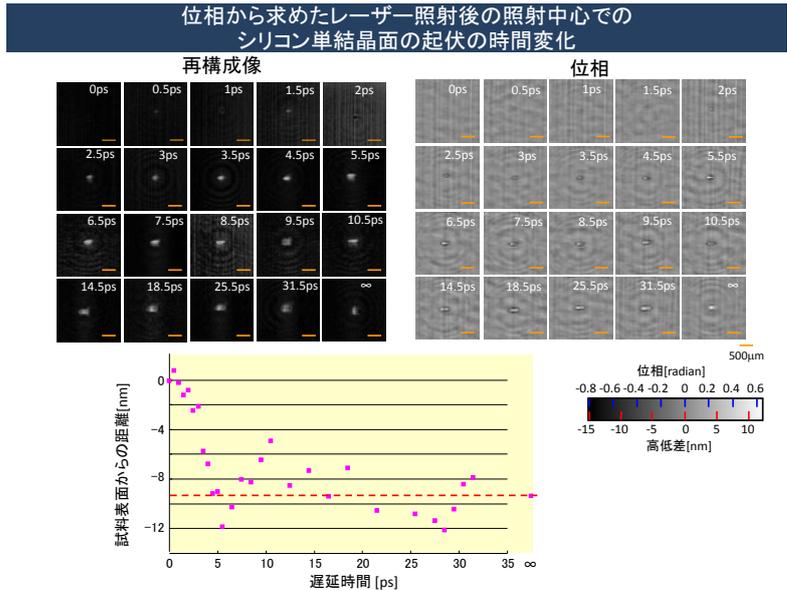
この研究は、(1)の超高速イメージング技術との組合せで、光物質科学分野開拓に不可欠な光励起による固体物質の高速構造変化とフェムト秒可視光イメージングの同時測定技術の構築を目標とする研究開発である。最近の研究では、フェムト秒レーザーでシリコンミラー表面を照射した際のシリコン表面の超短パルスイメージングを用いて、シリコンの瞬間的昇華に伴うナノメートルオーダーの表面起伏の変化を位相情報から取り出す実験に成功した。



4. XFEL で優先して行いたい研究

空間における光トリガー科学 ゼロエネルギーロス物質の研究

これまで本グループで行ってきた主要な研究課題である超短パルスイメージングとフェムト秒レーザー励起現象観測技術を融合し、波長の異なる可視光フェムト秒レーザーを「励起する光」と「電子を見る光」とし、それにXFELからの「原子を見る光」を組み合わすことで、光励起電子やフォノンの時間・空間変化、光励起に伴う格子緩和・相変化の時間・空間変化などを系統的に解析できる光トリガー励起構造ダイナミクス計測技術を完成する。そしてこの計測技術を用いて、「電気から光へ」のゲームチェンジを



目指すゼロエネルギーロス物質開発支援のためのピコ秒・ナノメートルの世界 (未知の時空間) 活用するための新研究学術領域「光トリガー科学」の創成に展開したい。

5. まとめ

- 1) ナノマテリアルグループでは、XFELでの測定を目指して、コヒーレント回折イメージング基盤装置、光励起系反射率等観察用フェムト秒顕微鏡システム、磁気スペックル測定用装置などの装置系の開発を行ってきた。
- 2) 主要な研究成果としては、コヒーレント

X線回折イメージングにおける時間分解能の追求 における超短パルスイメージングの開発、ホログラフィー法 (フーリエ変換ホログラフィー、HERALD法)を用いたコヒーレント光イメージングの開発、クロスビームトポグラフィーを用いた超高速イメージング開発を目的とするインラインホログラフィーと、クロスビームトポグラフィーによる光励起イメージングの基礎実験を挙げることができる。

3) 本グループとして、XFELによる光トリガー励起構造ダイナミクス測定を活用した時空間における光トリガー科学 (ゼロエネルギーロス物質) を提案する。

