

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24年 5月29日現在

機関番号：14301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2010～2011

課題番号：22656008

研究課題名（和文）コンパクトフェムト秒X線源の探査研究

研究課題名（英文）

Development of femto-second X-ray source

研究代表者

松尾 二郎 (MATSUO JIRO)

京都大学大学院・工学研究科・准教授

研究者番号：40263123

研究成果の概要（和文）：

レーザー光を数 μm まで光学レンズを用いて集光し、高繰り返し低ピークパワーのレーザーシステムでX線を発生させるのに十分なエネルギー密度を確保することができた。また、安定なX線を長い間発生させるために、回転・並進によるローター型のターゲットシステムを新たに試作した。レーザー密度を高くするためにはターゲットを焦点位置に正確に合わせる必要である。ターゲットを大気中に設置しているため精度の高い回転・並進機構を採用できた。これにより数日の連続運転が可能なX線発生システムを実現できた。

本提案によるフェムト秒X線を用いて、様々な材料で起こる構造変化の様子を調べるため、半導体表面の加熱・融解現象の観察を行った。レーザー加熱・融解は、レーザーアニール技術として広く用いられており、結晶融解やその再結晶化は基礎的な観点からの興味だけでなく、応用上も極めて重要な課題である。半導体単結晶からのフェムト秒のX線回折と先行研究の低繰り返しレーザーを用いたフェムト秒のX線回折のデータと比較することにより、本手法が大型レーザーと遜色のない優れた手法で有ることを実証した。

研究成果の概要（英文）：

Compact femto-second X-ray source has been developed with low pulse power high repetition rate femtosecond laser, which is commercially available. This source provides enough pulse X-ray for diffraction experiment, when 800 nm laser beam was focused down to a few μm by using optical chromatic lens. The life time of the source is quite long (a few days!), because rotating Cu target with translational motion is used under atmospheric pressure. High mechanical precision is necessary to provide stable X-ray.

Ultra-fast melting of semiconductor surface was observed with this system. This phenomenon is very important for not only fundamental research but also applications, such as laser annealing and optical memories. Comparison of the results with previous study, in which high power low repetition rate laser was utilized, showed that this new femto-second X-ray source has comparable capability in X-ray diffraction experiments.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
22年度	1,600,000	0	1,600,000
23年度	1,500,000	450,000	1,950,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,100,000	450,000	3,550,000

研究分野： 総合工学

科研費の分科・細目：原子力学、放射線工学・ビーム科学

キーワード：フェムト秒、X線回折、相転移、レーザー、結晶

1. 研究開始当初の背景

近年の大強度レーザーシステムの急速な発展により、小型で使いやすいフェムト秒レーザーが開発され、様々な超高速現象の解明に広く利用されている。これまでの多くの研究は光（レーザー光）をプローブとし、物質の反射率や透過率の変化を高い時間分解能で観察するものであり、光物性の変化を通して、物質の構造変化を議論していた。一方、原子構造を直接測定できるX線は、放射光に代表されるように今や物性研究にはなくてはならない道具となっている。X線を用いて超高速現象を解明しようという試みが、大強度レーザーの進歩と相まってなされてきた。大強度レーザーによるプラズマから発生させたフェムト秒のX線を用いる手法は、超高速現象の解明に有効であり、固体中のダイナミクスを原子の動きとして直接観察ができる画期的な手法として期待されている。

2. 研究の目的

これまでフェムト秒X線発生には、低繰り返し(10Hz)高ピーク出力(数十 mJ)の多段の大型レーザーが用いられてきた。このような大型レーザーは極めて複雑なシステムであるため、大型レーザーシステムを研究しているところだけが保有することができ、その利用は限定されていた。テーブルトップサイズのレーザーで同等以上の性能を持つX線源が実現できれば、そのインパクトは極めて大きなものとなる。さらに、低ピーク出力レーザーにより発生させたX線のパルス幅は、高ピーク出力レーザーによるものよりも短いことも、大きな特徴であり、利点である。

本研究は、これまで用いられてきた低繰り返し高パルス出力の大型レーザーによるフェムト秒X線発生システムと同等以上の性能を、高繰り返し低パルス出力のテーブルトップレーザーにより達成し、超高速原子構造変化をフェムト秒X線回折法により評価することを目的とする。

3. 研究の方法

本研究では、テーブルトップサイズの高繰り返し(1Hz)低出力(数 mJ)小型再生増幅型のTi:Al₂O₃レーザーを用いフェムト秒のパルス幅を持つX線を発生する。これにより低繰り返し(10Hz)高ピーク出力(数十mJ)の大型レーザーにより発生するフェムト秒X線に匹敵する大強度のX線源を実現する。低出力の特長を活かしパルス幅の短いX線の

発生を目指すとともに、真空を用いないコンパクトで長寿命の発生源とする。さらに、このX線源を用いて固体で起こる超高速の原子構造変化をフェムト秒の時間分解能で観察をおこなうフェムト秒X線回折を行い、本X線源が断熱的に変化する固体のダイナミクスを解明に貢献できることを示す。

4. 研究成果

低いレーザー強度で効率的にX線を発生させるためには、エネルギー密度の高精度制御が欠かせない。今回の研究で用いたレーザーシステムで利用できるレーザーパルスは、パルス幅80fs、パルスエネルギー2.5mJであるため、効率的にX線を発生させるためにはレーザー光を数 μm に集光することが必要である。光学レンズを用いて数 μm まで集光し、高繰り返し低ピークパワーのレーザーシステムでX線を効率的に発生させるのに十分なエネルギー密度を確保することができた。

本研究では高繰り返しのレーザーシステムを用いるため、これまで以上に長寿命のターゲットシステムが必要である。長寿命の安定なX線を発生させるために、回転・並進によるローター型のターゲットシステムを新たに試作した。レーザー密度を高くするために、これまでの発生源に比べレーザーを小さく集光する必要があり、ターゲットを焦点位置に正確に合わせる必要がある。ターゲットを大気中に設置することで精度の高い回転・並進機構を採用することができ、これによりターゲット位置を数 μm 以下の精度で一定に保つようにした。これらの工夫により、数日の連続運転が可能なX線発生システムを実現できた。

本提案によるフェムト秒X線を用いて、様々な材料で起こる構造変化の様子を観察した。CdTeやGaAs表面の加熱・融解現象の観察を行った。レーザー加熱・融解は、レーザーアニール技術として広く用いられており、結晶融解やその再結晶化は基礎的な観点からの興味だけでなく、応用上も極めて重要な課題である。CdTeやGaAsなどの半導体の単結晶からのフェムト秒のX線回折は、先行研究がありマクロな融解に先立つ極めて速度の速い融解現象が見つかっている。これまでの低繰り返しのレーザーを用いたフェムト秒のX線回折のデータと比較することにより、本手法が大型レーザーと遜色のない優れた手法で有ることを実証した。

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 6 件)

- ① M. Hada, K. Okimura, J. Matsuo, Characterization of structural dynamics of VO₂ thin film on c-Al₂O₃ using in-air time-resolved X-ray diffraction, *Physical Review B*, Vol. 82, 2010, 153401-1~4.
- ② M. Hada, Y. Hontani, S. Ibuki, K. Ichiki, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki, J. Matsuo, Evaluation of Surface Damage of Organic Films due to Irradiation with Energetic Ion Beams, *AIP Conference Proceedings*, Vol. 1321, 2010, 314~316.0
- ③ G. Sciaini, M. Hada, J. Matsuo, A. Karantza, G. Moriena, R. J. D. Miller, Coherent Acoustic Phonons in Highly Oriented Bismuth Films Monitored by Femtosecond Electron Diffraction, *Ultrafast Phenomena XVII Proceeding of the 17th International Conference*, 2011.
- ④ M. Hada, K. Okimura, J. Matsuo, Photo-induced lattice softening of excited-state VO₂, *Applied Physics Letters*, Vol.99, 2011, 051903-1~3.
- ⑤ M. Hada, J. Matsuo, Evaluation of lattice motion in CdTe single crystal using in-air tabletop time-resolved X-ray diffractometer, *IOP Conference Ser.: Material Science Engineering*, Vol.24, 2011, 012010-1~5.
- ⑥ G. Moriena, M. Hada, G. Sciaini, J. Matsuo, R.J.D. Miller, Femtosecond electron diffraction: Preparation and characterization of (110)-oriented bismuth films, *Journal of Applied Physics*, Vol.111, 2012, 043504-1~4.

[学会発表] (計 11 件)

- ① G. Sciaini, M. Hada, J. Matsuo, A. Karantza, G. Moriena, R. J. D. Miller, “Coherent Acoustic Phonons in Highly Oriented Bismuth Films Monitored by Femtosecond Electron Diffraction”, *Ultrafast Phenomena 17*, 2010/4/23, USA.

- ② 羽田真毅, 松尾二郎, “時間分解 X 線回折法を用いた VO₂ 薄膜の構造ダイナミクスの評価”、埋もれた界面の X 線・中性子解析に関するワークショップ、2010/7/26、名古屋大学
- ③ M. Hada, K. Okimura, J. Matsuo, “Structure dynamics of epitaxial VO₂ film on c-Al₂O₃ by using an in-air time-resolved X-ray diffraction”, 7th International Symposium on Ultrafast Surface Dynamics, 2010/8/26, Croatia.
- ④ 羽田真毅, 沖村邦雄, 松尾二郎, “時間分解 X 線回折法を用いた VO₂ 薄膜の構造ダイナミクスの評価”、第 71 回応用物理学会学術講演会、2010/9/16、長崎大学
- ⑤ 羽田真毅, German Sciaini, Karantza Angelo, Moriena Gustavo, R. J. Dwayne Miller, 松尾二郎, “フェムト秒電子線回折法を用いた高配向性 Bi 薄膜の音響コヒーレントフォノンの観測”、第 71 回応用物理学会学術講演会、2010/9/16、長崎大学
- ⑥ 松尾二郎, 羽田真毅, “フェムト秒回折法で見る結晶構造のダイナミクス”、第 30 回表面科学学術講演会、2010/11/6、大阪大学、招待講演
- ⑦ 本谷友作, 羽田真毅, 松尾二郎, “ジァリールエテンの光誘起相転移現象のフェムト秒実時間観察”、第 72 回応用物理学会学術講演会、2011/8/30、山形大学
- ⑧ 瀬木利夫, 羽田真毅, 沖村邦雄, 松尾二郎, “時間分解 X 線回折法を用いた VO₂ 薄膜の構造ダイナミクスの評価”、励起ナノプロセス研究会 第 7 回研究会、2011/11/1、大阪府堺市
- ⑨ 本谷友作, 羽田真毅, 瀬木利夫, 青木学聡, 松尾二郎, “ジァリールエテンの光誘起相転移現象のフェムト秒実時間観察”、励起ナノプロセス研究会 第 7 回研究会、2011/11/1、大阪府堺市
- ⑩ Y. Hontani, M. Hada, T. Seki, T. Aoki, J. Matsuo, “Time-resolved Observation of the Photoinduced Phase Transition of Diarylethene”, Banff Meeting on Structural

Dynamics Ultrafast Dynamics with Xrays
and Electrons, 2012/2/19, Canada.

- ⑪ 本谷友作、羽田真毅、瀬木利夫、青木学
聡、松尾二郎、“ジアリールエテンのフ
ォトクロミック反応の超高速実時間観
察”、第 59 回応用物理学会、2012/3/17、
早稲田大学

〔図書〕（計 0 件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計 0 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況（計 0 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

松尾 二郎 (MATSUO JIRO)

京都大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし