

「先端光源を駆使した光科学・光技術の融合展開」  
平成 21 年度採択研究代表者

腰原 伸也

東京工業大学大学院 理工学研究科・教授

光技術が先導する臨界的非平衡物質開拓

## § 1. 研究実施の概要

本研究では、5 年 5 ヶ月の期間内に以下の 4 点を重点的に推進する。このために各々の項目の全体スケジュールに沿って本年度は以下の計画を実施した。

- (1) **新光源開発と時間分解光電子顕微鏡への利用**: 時間分解型光電子顕微鏡に適したコンパクトなフェムト秒広波長域広繰り返し・広周波数可変光源、並びにナノスケール相転移ダイナミクス観測に不可欠な、時間分解光電子顕微鏡の設計を行い、必要なレーザー備品、真空主要部品の発注準備を完了した。
- (2) **新物質・構造物性開拓**: 時間分解光電子顕微鏡や動的 X 線観測技法を組み合わせ、物質開発指針の実証研究を行うために、そのデモンストレーション候補となる物質の探索を開始した。効率的な物質探索には、高い安定性を持ったフェムト秒レーザーによる高精度の分光測定が必要不可欠である。そこで今年度は、既存の fs-ps 分光測定装置に高安定ダイオードレーザーを導入し、物質探索の効率化と信頼度向上を達成した。また分光測定の際の繰り返し周波数と光子密度を高度に制御するための装置として、チタンサファイアレーザーにキャビティダンパーを導入し装置の調整を完了した。
- (3) **理論**: 共鳴 X 線散乱などを用いた電子的ドメイン観測や、揺らぎ観測に関するデータを解析し、理論予測をする上で、その基盤となるワークステーションを購入し、計算ソフトの開発、さらには基盤データ・ルーチンソフトの開発準備に着手した。
- (4) **フェムト秒動的 X 線測定技法**: 来年度研究開始を目指して、契約締結準備に専念した。

## § 2. 研究実施体制

(1) 「東工大・腰原」グループ

- ① 研究分担グループ長: 腰原 伸也 (東京工業大学大学院、教授)

② 研究項目

新光源開発と時間分解光電子顕微鏡への利用、並びにその物質開拓

(2)「東北大・石原」グループ

① 研究分担グループ長:石原 純夫(東北大学、准教授)

② 研究項目

非平衡共同現象における動的構造解析の理論構築

(3)「分子研・米満」グループ

① 研究分担グループ長:米満 賢治(分子科学研究所、准教授)

② 研究項目

動的相転移過程の解析と理論構築

### § 3. 研究実施内容

(文中に番号がある場合は(4-1)に対応する。)

本研究では、5年5ヶ月の期間内に以下の4点を重点的に推進する。このために各々の項目の全体スケジュールに沿って本年度は以下の研究を実施した。特に本年度は開始初年度でもあり、主要装置設計、仕様決定などの準備作業と、物質開発のための既存装置改良のための装置整備が中心となった。

**(1) 新光源開発と時間分解光電子顕微鏡への利用部門:**今年度の主要目標として、時間分解型光電子顕微鏡に適したコンパクトなフェムト秒広波長域広繰り返し・広周波数可変光源とナノスケール相転移ダイナミクス観測に不可欠な、時間分解光電子顕微鏡の設計、仕様決定を行う。そして必要なレーザー備品、真空主要部品の発注準備を行った。

まず、レーザー光源に関しては、fs 時間分解 PEEM の多様な要求を満たすレーザー光源は市販品、研究段階を含めて存在しないため、本研究では最近レーザー加工用に利用できるようになった高出力 Yb:KGW 再生増幅レーザーをベースに繰り返しが 1kHz から 350kHz まで自由に可変な光源を設計・発注した。これに対応した OPA などの波長変換用装置備品発注も実施した。

光源と同時に、物質開発用試料に柔軟に対応できる 50~100nm 程度の空間分解能を持った微小(ナノ)ドメインダイナミクス観測装置(時間分解光電子顕微鏡(PEEM))の設計にも着手した。これはミクロンオーダーの結晶を用いて 100~数 nm 相関構造を対象とする X 線や、通常ミクロンオーダーを対象とする高速分光研究と相補的な技法であり、基盤的物質開拓という意味合いでも将来的有用性が大きい重要技術である。さらには動的 X 線構造観測技法にとっても、物質のドメイン構造はあくまで解析の前提データとして必要不可欠なものであり、今後の当該分野

の基礎を作り上げるという点でも重要なものとなる。とりわけ、従来の経験を活かして、物質科学からの多彩な試料への対応要求に応えるべく、試料交換用予備真空チャンバーを設計設置するなどの新しい工夫を加えた設計を心がけた。

(2) **新物質・構造物性開拓部門**: 今年度は、PEEM や X 線観測技法を組み合わせ、物質開発指針の実証研究を行うためにそのデモンストレーション候補となる物質の探索を開始した。今年度は、従来より開発を続けてきた、量子揺らぎを伴う強誘電体系を中心におき、いくつかの候補物質を得ることができた。

動的局所構造—電子相互作用情報を PEEM 観測や X 線散乱観測技法によって得るにあたっては、試料における光学侵入長の問題などの解決のために、第一段階として高い安定性を持ったフェムト秒レーザーによる高精度の分光測定が必要不可欠である。そこで今年度は既存の fs 可視—近赤外並びに ps 赤外レーザー分光測定装置に、高安定ダイオードレーザを導入し、物質探索の効率化と実際の探索作業の信頼度を期待通り向上させることができた。また磁性変化を伴う光誘起協力現象の前駆的過程、特に個別励起から協働的応答過程への応答発展過程を、動的偏光回転などで解析するに当たっては、多励起子状態や多(スピン)ポーラロン状態などの弱励起条件下でのダイナミクスが鍵となる。このような条件でのデータを効率よく得るためには、繰り返し周波数と光子密度を高度に制御するためのシステムが必要不可欠である。このため既存のチタンサファイアレーザーの出力制御を改良して使用するためのキャビティダンパーを導入し、光学応答評価装置の準備を予定通り完了することができた。

(3) **理論部門**: 共鳴 X 線散乱などを用いた電子的ドメイン観測や、揺らぎ観測に関するデータを解析し、理論予測をする上で、その基盤となる知的インフラの整備に今年度は専念した。新しい観測技法の提案、有効性の評価などを行うための計算ソフトの開発、そのためのワークステーションを購入し、基盤データ・ルーチンソフトの開発準備に着手した。また、過去に理論的研究経験を積んで来ている、TTF-CA や EDO-TTF、ペロブスカイト構造 Mn 酸化物などを具体例に、実験と対応がつく物理量の計算等の試行も開始した。

(4) **フェムト秒動的 X 線測定技法**: 来年度研究開始を目指して、国際会議の席を利用した先方との密な研究打ち合わせと契約締結準備に専念した。

## § 4. 成果発表等

### (4-1) 原著論文発表

#### ● 論文詳細情報

Desheng Fu, Mitsuru Itoh and Shin-ya Koshihara “Invariant lattice strain and polarization in BaTiO<sub>3</sub>-CaTiO<sub>3</sub> ferroelectric alloys”, J.Phys.: Condens. Matter 22 (2010) 052204 doi: 10.1088/0953-8984/22/5/052204