

研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名： 高いコヒーレンスをもつ軟 X 線レーザー を利用した新固体分光法の構築

2. 研究代表者名及び主たる研究参加者名(研究機関名・職名は研究参加期間終了時点):

研究代表者

並河 一道 (東京学芸大学教育学部 教授)

主たる共同研究者

水木 純一郎 ((独)日本原子力研究開発機構 副部門長)

圓山 裕 (広島大学大学院 教授)

松下 栄子 (岐阜大学 教授)

渡辺 恒夫 (東京理科大学 教授)

松下 三芳 (JFEミネラル(株) 部長)

那須 奎一郎 (物質構造科学研究所 教授)

3. 研究実施概要

近年、軟 X 線から X 線に至る短波長領域において、高コヒーレンス、高強度の短パルス光源の開発が進行している。これらの高性能の光源の特性を最大限に生かした物質現象の研究手法には大きな期待がかかっているにもかかわらず、計測法の研究は必ずしも順調に進行しておらず、斬新なアイデアによるブレークスルーと実証実験が待ち望まれていた。このような背景のもと、本研究は、プラズマ軟 X 線レーザーの高いコヒーレンス特性を生かして初めて実現できる新しいタイプの固体分光法の構築を目的とした。

その実現に向けて、次のサブテーマが設定されている。

①軟 X 線レーザーを光源としたピコ秒領域でのスペックル強度時間相関分光法の構築。(軟 X 線レーザーグループ)

②これと相補的な情報を与えるスローダイナミクスの観測法の開発。(放射光グループ)

③これらの手法による誘電体の相転移点付近での分極クラスターの生成消滅などナノ構造の動的挙動の実験的研究。(軟 X 線レーザーおよび放射光グループ)

④電子相関や交換相互作用の情報を得るための原子内殻 2 ホール生成分光法の開発。(軟 X 線レーザーグループ)

⑤軟 X 線散乱および2ホール励起状態に関連する理論的研究。(理論グループ)

また、試料作成および放射光による補助的測定を担当する研究グループも参加している。

本計画の中核をなすスペックル強度時間相関分光法については、マイケルソン型の遅延生成器で2連パルスを生成して試料に照射し、ストリークカメラでスペックル散乱強度の分離をおこなうという新方式を考案した。この原理に基づく軟 X 線強度時間相関分光装置を設計・製作して、日本原子力研究開発機構(原研)関西光科学研究所に設置し、波長 13.9nm, パルス幅 7ps の軟 X 線レーザーパルスを用いて測定を行った。これにより強誘電体 BaTiO₃ において相転移の前駆現象として現れる分極クラスターの緩和時間の測定を行なった。同じ手法を用いてリラクサーPMN-27%PT(Pb, Mg, Nb の酸化物と Pb, Ti の酸化物の混晶)における分極ゆらぎの観測も行った。

放射光グループでは、軟X線レーザーの実験で得られる時空相関の意味を明らかにする目的で、より長い時間スケールにおいて時間相関を測定する装置を開発し、相補的な実験を行った。主にリラクサー

PZN-9%PT を試料として、X 線スペックルの空間相関を測定し、常誘電相に出現する分極ナノドメイン (PNR) の温度依存性を調べた。

理論グループは軟 X 線による時間相関実験を理論的に考察し、定式化を行うとともにシミュレーションを行った。また、強相関電子系における電子相関や交換相互作用などに関する情報を得ることを目的として、遷移金属内殻に生成した2ホール励起状態のエネルギー準位の分析を行い、2ホール発光の予想を立てた。また軟 X 線レーザーグループは、その検証を行うために、高い効率で軟 X 線発光の分光測定が行える光学系を開発した。

4. 事後評価結果

4-1. 研究の達成状況及び得られた研究成果(論文・口頭発表等の外部発表、特許の取得状況等を含む)

第一のテーマとして、軟 X 線レーザーを光源とし、散乱の時間相関をとることにより揺らぎを観測するという全く新規な手法を提案し、強誘電体 BaTiO_3 に適用することで相転移近傍のドメイン生成消滅に起因する分極揺らぎを検出することに成功した。相転移直上の常誘電相において、10ps 程度の時定数をもつ分極ゆらぎがあることを初めて明らかにした。さらに相転移温度より数度高い温度で揺らぎの時定数が最大の 100ps に達し、さらに高温での振舞いは、分極ゆらぎの振幅の振舞いとは明らかに異なることを示した。これにより、強誘電相転移のメカニズムをナノメートル領域での揺らぎという観点から解明する手がかりを得た。また、これにより手法の有効性を実験的に検証することができた。スペックルの時間相関測定では、当初から計画されていたストリークカメラによる測定の他に、より簡便で感度がよく、2次元波数依存性の測定も可能な CCD による多重露光方式も成功させた。

また、2例目としてリラクサー PMN-27%PT における分極ゆらぎの観測も行った。この場合もスペックル強度の時間相関において 10ps の時間領域で温度に依存する緩和時間が見出された。しかし、その時定数は相転移温度にピークを持ち、 BaTiO_3 とは明らかに異なる。以上、2 種の強誘電性物質においてゆらぎの観測に成功したことから、この手法の一般性が実証された。

第二のテーマとして、放射光利用による遅い揺らぎの検出法を開発した。微小空間でのゆらぎを観測するために、超高分解能 X 線顕微鏡を導入し、50nm の空間分解能を実現した。温度・位置制御、低周波振動の除去などが技術開発の中心課題であった。この装置を用いて、リラクサー PZN-9%PT (Pb, Zn, Nb の酸化物と Pb, Ti の酸化物の混晶) における X 線回折散漫散乱強度の非常に遅い時間相関(ミリ秒から秒)を測定することに成功した。2次元相関スペクトルとその温度変化から 10-100nm の空間スケールでの揺らぎが 445K の相転移近傍で大きく変化することを示した。

第一、第二いずれのテーマでも非常に独創性の高い手法を開発しており、その意味で目的は達せられたといえる。

軟 X 線レーザーによるスペックル実験の結果の出版は、インパクトファクターの高い雑誌を狙っていたために遅くなったが、独創性を認められ Phys. Rev. Lett. (2009 年)に掲載となった。装置に関しては RSI に掲載されている。関連する理論では多数の論文が出版され、放射光利用によるスローダイナミクスの時間相関についても論文公表が進んでおり、実験研究の出版件数は多くないが、一応の基準は満たしているといえる。

2ホール発光の実験的検証は、原子力機構におけるレーザーによる励起密度が予想通りに上がらなかったために中止となったが、本プロジェクトは非常に挑戦的なテーマで構成されていたので、これは容認すべきであろう。

4-2. 研究成果の科学技術や社会へのインパクト、戦略目標への貢献

軟 X 線～X 線領域の時間相関測定は、自由電子レーザー利用の研究計画において、最近しばしば取り上げられるようになっている。その先鞭をつけた意義はきわめて大きい。

研究分野の性格上、現段階で社会的なインパクトを議論するのは適当でないが、サイエンス向けの計測手法としての先進性は非常に高く評価できる。

4-3. 総合的評価

光源の不安定性やマシンタイムの制約、人的資源の不足など研究環境としては必ずしも恵まれていない面もあったが、原研で開発された軟X線レーザーの特徴に着目し、その性能や特徴を最大限に利用したサイエンスを展開した点は高く評価できる。これは、研究代表者の独創性と強い信念によって初めて可能になったものであり、その点でリーダーシップを評価したい。一方で、理論、試料作成、放射光、レーザーと非常に広い分野にわたるチームであったために、プロジェクト全体の統制がとれていたとはいいがたい面もあった。

BaTiO₃だけでなく、PMN系リラクサーにおいても相転移温度近傍での時間相関の測定に成功しており、手法の一般性は示されたと言える。今後は、電荷密度波など軟X線感受率の揺らぎを伴うさまざまな物質現象における揺らぎの研究へと応用が広がる可能性がある。また、ダブルパルスによる時間相関測定は、単発現象やゆらぎ現象のダイナミクス研究手法として有効なので、自由電子レーザーなど光源の整備が進めば、いろいろな形で応用が進むものと考えられる。

また、原研におけるレーザー開発グループに、物性分野での利用研究の必要性和有効性を示し、研究所の方針にも大きな影響を与えた点は高く評価してよい。