



FEL を用いた材料科学現象の超高速コヒーレントイメージングに向けて

西野吉則¹, 田中義人², 松原英一郎³

¹北海道大学 電子科学研究所

〒001-0021 北海道札幌市北区北21条西10丁目

²理化学研究所播磨研究所 放射光科学総合研究センター

〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

³京都大学大学院 工学研究科 材料工学専攻

〒606-8501 京都市左京区吉田本町

要旨 FEL の超短パルス性能と完全な空間コヒーレンスを利用した、超高速コヒーレントイメージングは、新たな科学を切り拓く可能性を秘めた技術である。X線 FEL を用いると、究極的には、原子がフェムト秒の時間スケールで動く様子をも観察することができる。本稿では、SCSS 試験加速器からの EUV-FEL を用いて我々がこれまでに行ってきた、材料科学現象の超高速コヒーレントイメージングに向けた基礎実験の概要について報告する。

1. はじめに

短波長コヒーレント光源の近年の目覚ましい発展に伴い、回折顕微鏡を初めとするコヒーレント光を利用したイメージングが世界的な注目を集めている¹⁾。コヒーレントイメージングでは、通常の顕微鏡で必要とされる像形成のためのレンズを用いず、試料からのコヒーレント散乱パターンを計測し、その後、計算機で試料像を再構成する。このため、X線や紫外線など、開口数の大きなレンズの製作が困難な波長領域の光に対して、特に有効である。

SPring-8 のアンジュレーター光を用いて、ヒト染色体の3次元イメージングが最近行われたように、細胞小器官などの透明な位相物体のイメージングに威力を発揮する²⁾。材料科学の分野においては、ナノ結晶の歪みなどわずかな構造の変化をも3次元イメージングできる³⁾。達成可能な分解能は、放射線損傷が無視できるような試料に対しては、究極的には波長によって制限され、X線を用いれば原理的には原子分解能も達成可能である。現状では、SPring-8 のアンジュレータービームラインでの Kirkpatrick-Baez ミラーを用いた実験で、2次元イメージングで3 nm、3次元で10 nm 以下を達成している⁴⁾。

さらに、FEL を用いることにより、コヒーレントイメージングを時間軸方向に押し広げた4次元イメージングへの新たな可能性が開かれる。FEL はフェムト秒という極めて短いパルス幅をもつため、X線 FEL により、究極的には、原子分解能での超高速の構造ダイナミクス測定が可能となる。Fig. 1 に、FEL を用いたポンプ・プローブ法による構造ダイナミクス測定概念図を示す。

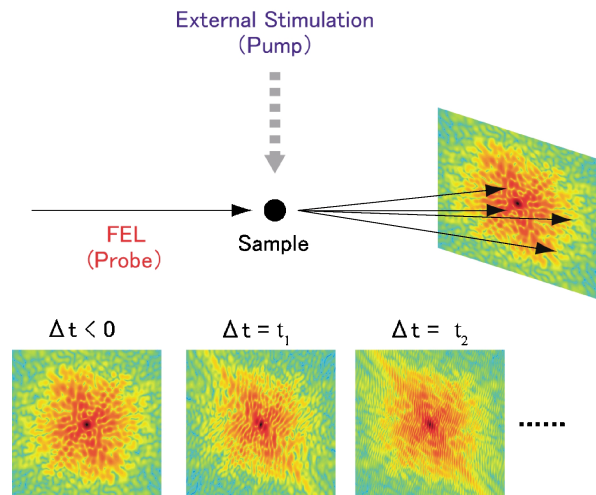


Fig. 1 Conceptual schematic of structural dynamics measurement by the pump-probe technique.

2. SCSS 試験加速器を用いた基礎実験

我々は、FEL を利用した材料科学現象の超高速コヒーレントイメージングに向けた研究を進めている。高空間分解能でのコヒーレントイメージングに対応した真空チャンバ装置を新たに開発し、SCSS 試験加速器からの EUV-FEL を用いて基礎実験を行っている。これまでに、種々のコヒーレントイメージング技術を取り入れた、サブピコ秒スナップショット測定やポンプ・プローブ法での構造ダイナミクス測定に成功している。

2.1 サブピコ秒露光コヒーレントイメージング

構造ダイナミクス測定に向けた第一歩として、シングルショットでのコヒーレントイメージング実験を行った。FEL のパルス幅はサブピコ秒と極めて短く、シングルショットデータから試料像が再構成できれば、サブピコ秒の露光時間をもつコヒーレントイメージングが実現する。これにより、超高速で起こる材料科学現象も、おれることなく撮影できる。

実験では、HERALDO (holography with extended reference by autocorrelation linear differential operation) と呼ばれる近年開発された新しいホログラフィーの手法を用いた⁵⁾。HERALDO は、古くから知られるフーリエ変換ホログラフィーを改良した手法である。フーリエ変換ホログラフィーでは、試料の隣に参照光源となるピンホールを置くが、このピンホールの大きさがフーリエ変換ホログラフィーでの再構成像の空間分解能を決める。高い空間分解能を得るためにピンホール径を小さくすると、参照光の強度が弱くなり、結果としてホログラムデータの統計精度が悪化するという問題があった。HERALDO ではこの問題を克服し、広がった参照光源を用いても、測定データの統計精度を高く保ったまま、高い空間分解能が実現可能である。この特徴は、FEL のパルスエネルギーに最適化したシングルショット計測を行う上で重要となる。

Fig. 2 に SCSS 試験加速器を用いた HERALDO 測定の様子を示す。波長61 nm, パルス幅~100 fs, パルスエネルギー>10 μ J の自由電子レーザーを試料に照射し、試料の下流776 mm に置かれた CCD 検出器でホログラムを計測した。試料として用いたテストパターンの大きさや形状は、シングルショット計測に適したホログラムデータが得られるよう設計した。シングルショット計測は、ビームラ

インのパルスセレクターの外部トリガーモードを利用して行った。パルスセレクターは、FEL の繰り返し周期と同期して、任意数のパルスを切り出せる。本計測では、パルスセレクターの切り出しパルス数を1に設定し、外部トリガー端子に CCD の露光開始信号を入力した⁶⁾。

我々はシングルショットでの HERALDO 測定を行い、試料像を再構成することに成功した⁷⁾。この実験により、FEL を用いたサブピコ秒露光でのコヒーレントイメージングが実現した。

2.2 ポンプ・プローブ法を用いた超高速コヒーレントイメージング

シングルショット計測したホログラムの再構成の成功を受けて、フェムト秒レーザーによって引き起こされる構造ダイナミクス測定を試みた。EUV-FEL に同期した、波長800 nm のフェムト秒チタンサファイアレーザー (FEL 同期フェムト秒レーザー) を試料上に集光させた際に起こるアブレーションを観察した。測定では、標準的な試料としてシリコンを使用した。シリコンがシングルショットでアブレーションを起こす条件は、SPring-8 BL19LXU の第二実験ハッチにあるフェムト秒チタンサファイアレーザーを用いて事前に確かめた。

SCSS 試験加速器からの EUV-FEL を用いたポンプ・プローブ法でのインラインホログラフィー測定では、FEL 同期フェムト秒レーザーをポンプ光、EUV-FEL をプローブ光として用いた。FEL 同期フェムト秒レーザー照射後10 ps には、アブレーションによる同心円状の構造を持ったホログラムパターンが明瞭に観測できた。現在、像の再構成など詳細なデータ解析を進めているところである。

謝辞

本稿で報告した内容は、以下の方々をはじめとする多くの研究者との共同研究である(敬称略): 岡谷基弘(京大), 伊藤基巳紀(理研), 野崎公彦(理研), 岡田真(兵庫県立大), 松井真二(兵庫県立大), 矢橋牧名(理研), 永園充(理研), 富樫格(理研), 石川哲也(理研)。また、本研究を支えて頂いた XFEL 合同推進本部の全ての方々に感謝する。

本研究は、科研費および、XFEL 利用推進研究課題の助成を受けたものである。

参考文献

- 1) 西野吉則, 石川哲也: 放射光 **19**, 3 (2006).
- 2) Y. Nishino, Y. Takahashi, N. Imamoto, T. Ishikawa and K. Maeshima: Phys. Rev. Lett. **102**, 018101 (2009).
- 3) M. A. Pfeifer, G. J. Williams, I. A. Vartanyants, R. Harder and I. K. Robinson: Nature (London) **442**, 63 (2006).
- 4) Y. Takahashi, N. Zettsu, Y. Nishino, R. Tsutsumi, E. Matsumura, T. Ishikawa and K. Yamauchi: Nano Letters **10**, 1922

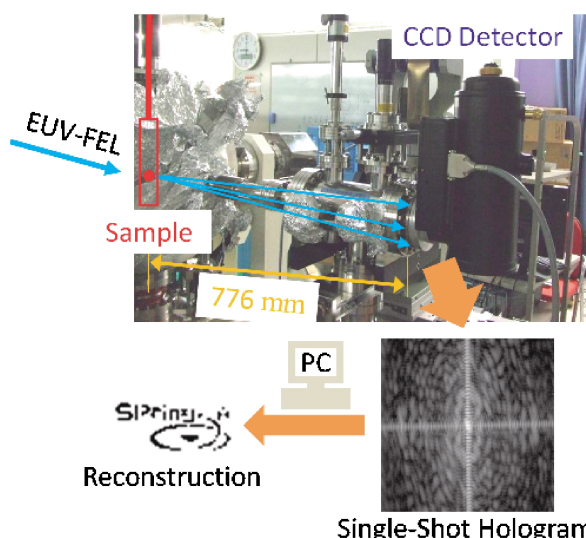


Fig. 2 Experimental setup for single-shot holography measurement using EUV-FEL from the SCSS test accelerator, and an example of experimental result. The instrument enables us to take phase-contrast subpicosecond snapshots of the sample.

(2010).
5) M. Guizar-Sicairos and J. R. Fienup: Opt. Express **15**, 17592 (2007).

6) T. Kudo, T. Hirono, M. Nagasono and M. Yabashi: Rev. Sci. Instrum. **80**, 093301 (2009).
7) Y. Nishino *et al.*: submitted.

● 著者紹介 ●



西野吉則

北海道大学 電子科学研究所 コヒーレント X 線光学研究分野 教授

E-mail: yoshinori.nishino@es.hokudai.ac.jp

専門：コヒーレント X 線光学

【略歴】

1996年大阪大学大学院理学研究科物理学専攻博士課程修了，博士（理学）。1996年-2001年高輝度光科学研究センター，1998年-2000年ドイツ電子シンクロトロン（DESY）客員研究員，2001年-2010年理化学研究所，2010年より現職。



松原英一郎

京都大学大学院 工学研究科 材料工学専攻 教授

E-mail: e.matsubara@materials.mbox.media.kyoto-u.ac.jp

専門：X 線回折，構造解析，熱力学

【略歴】

1984年ノースウェスタン大学材料科学修了。1984年東北大学助手，1991年同大学講師，1993年京都大学助教授，1999年東北大学教授を経て，2005年より現職。



田中義人

理化学研究所 播磨研究所 放射光科学総合研究センター 基盤研究部 物質系放射光利用システム開発ユニット ユニッタリーダー

E-mail: yotanaka@riken.jp

専門：レーザー・放射光を用いた高速時間分解測定

【略歴】

1991年東京大学大学院理学系研究科物理学専攻博士課程中退，1992年博士（理学），1991年理化学研究所，1997年理化学研究所・播磨研究所研究員を経て，2009年1月より現職。

Toward ultrafast coherent imaging of materials science phenomena with FEL

Yoshinori NISHINO¹, Yoshihito TANAKA², Eiichiro MATSUBARA³

¹Research Institute for Electronic Science, Hokkaido University, Sapporo 001-0021, Japan

²RIKEN SPring-8 Center, Hyogo 679-5148, Japan

³Graduate School of Engineering, Kyoto University, Kyoto 606-8501, Japan

Abstract Ultrafast coherent imaging utilizing FEL with ultra-short pulse and full spatial coherence is a technique with the potential for new science. X-ray FEL ultimately enables the observation of atoms in motion in femtosecond time scale. In this article, we describe brief summary of our elementary experiments using EUV-FEL from the SCSS test accelerator aiming for ultrafast coherent imaging of materials science phenomena.