

# X線結像光学ニューズレター

No. 18 2003年7月発行

## BaTiO<sub>3</sub>のX線レーザースペックル観察によるドメイン構造の研究

東京学芸大学 並河一道

Ni様Ag過渡利得電子衝突励起型プラズマX線レーザーは、数ピコ秒のパルス幅を持つパルスX線光源で、1パルス当たり、 $10^{12}$ 個程度のX線光子を含む。光源サイズは $50\mu\text{m}$ 程度で、光源から1m離れたところのコヒーレント面積は $300\mu\text{m}\times 300\mu\text{m}$ 程度である。

ペロブスカイト構造を持つBaTiO<sub>3</sub>は変位型の強誘電体で、転移温度以下では面心にある $O^{2-}$ イオンと体心にある $Ti^{4+}$ イオンの位置が相対的にずれて分極が発生し、立方構造をとる。このため、転移温度以下では、分極のドメイン構造があると異なるドメインの間の不整合を解消するためにドメインの間にティルトが生じる。(001)面の表面にb軸と平行なドメイン壁を持つa/cドメイン構造があると、これらのドメイン間にドメイン壁を境界とするティルトが生じる。

このようなティルト構造を持つ表面にコヒーレントなX線がドメイン壁に直交する方位から入射すると、異なるティルトを持つドメイングループからの反射がティルトの角度の倍だけ異なる方向に現れ、かつ各々のグループに属するドメインからの散乱波は干渉パターン(スペックル)を生じる。

このようなスペックルの観察は、最近、関西原子力研究所光量子科学研究センターでTaiら[1]によって行われた。彼らは、プラズマX線レーザーを用いて、BaTiO<sub>3</sub>の瞬間スペックルを観察した。図にBaTiO<sub>3</sub>のa/cドメインの分域構造によるスペックルの温度依存性を示してある([1]のFig.2)。これらはX線レーザーの短パルス性( $\sim 7\text{ps}$ )を利用して分域の動的な動きを瞬間的に止めて見たことに相当するスペックルである。

試料の温度が室温から上昇して転移温度に近づくにしたがい、ドメイン間のティルトの角の減少に対応して2群の干渉パターンが近寄って、やがて一群に融合する様子が見取れる。このような干渉パターンは転移点直下まで観察されるが、転移点以上の正方相ではドメイン構造の消失を反映して(a)に示したスリット像と同様な反射パターンが観察される。詳細にみると、長距離相関を反映する散乱角の小さいスペックル像の領域の様子がTcの下3度付近から試料温度のわずかな違いによって明白に変化していることがわかる。

このような変化の様子は、散乱強度分布から試料上の位置に関する散乱振幅の相関関数を求め、さらにその空間周波数に関するパワースペクトルを求めてこれを調べることによって明らかにできる。その結果、Tcの下3度付近から細かいドメイン分布を反映する高い空間周波数に関するスペクトルが消失していくことが明らかになった。さらに、自己相関の存在する範囲を表す $Q=0$ を中心とするスペクトルの半価幅が転移点に向かって還元温度の冪で減少することがわかった。これは、転移温度の数度下から強誘電相には常誘電相が混在し始めることを意味している。この結果は、つい最近行った、Tcの上の常誘電相に現れる分極クラスターの温度依存性の研究によっても支持されている。

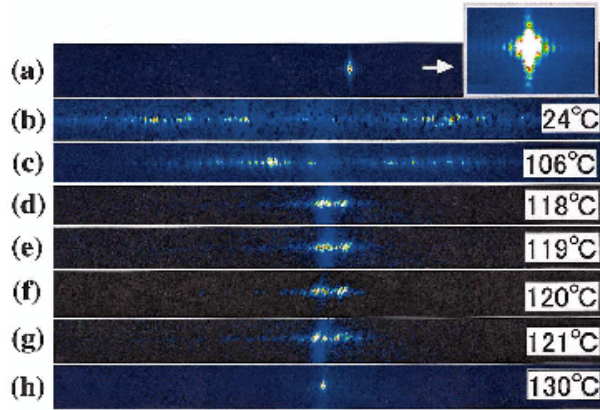


FIG. 2 (color). Speckle patterns measured by a single exposure of 7 ps with the TCE soft x-ray laser. (a) The direct probing beam pattern; (b) diffraction patterns via the  $a/c$  domain region at room temperature 24 °C; (c), (d), (e), (f), (g), and (h) correspond to the diffraction pattern from the same region of the sample at temperature 106 °C, 118 °C, 119 °C, 120 °C, 121 °C, and 130 °C, respectively. The Curie temperature of the sample is 122 °C. The scattering took place along the horizontal direction  $q$ , since the domain walls were set vertically. All these pictures are shown in a same scale for comparison.

[1] R. Z. Tai, K. Namikawa, M. Kishimoto, M. Tanaka, K. Sukegawa, N. Hasegawa, T. Kawachi, M. Kado, P. Lu, K. Nagashima, H. Daido, H. Maruyama, A. Sawada, M. Ando and Y. Kato, *Phys. Rev. Lett.* 89, 257602 (2002).

## S P r i n g - 8 軟 X 線 光 化 学 ビ ャ ム ラ イ ン B L 2 7 S U に お け る 熱 負 荷 に つ い て

(財) 高輝度光科学研究センター 大橋治彦

S P r i n g - 8 に は 合 計 3 本 の 軟 X 線 専 用 ビ ャ ム ラ イ ン ( 原 研 B L 2 3 S U , 共 用 B L 2 5 S U 及 び B L 2 7 S U ) が 稼 動 し て い る [ 1 ] 。 さ ら に 1 本 を 現 在 建 設 中 ( 理 研 B L 1 7 S U ) で あ る 。 特 に 共 用 ビ ャ ム ラ イ ン は 「 使 っ て 貰 っ て な ん ぼ の も ん 」 で あ る か ら 、 世 界 最 高 級 の 軟 X 線 領 域 の エ ネ ル ギ ー 分 解 能 を 達 成 し た と こ ろ で 、 多 く の ユ ー ザ の 皆 様 に 実 感 い た だ け な け れ ば 何 に も な ら ない 。 い つ で も 、 ど こ で も ( ど の 設 計 エ ネ ル ギ ー 領 域 で も ) 、 誰 に で も 、 そ の ビ ャ ム ラ イ ン が 到 達 し う る 最 高 性 能 を 提 供 す る た め に 我 々 ビ ャ ム ラ イ ン 担 当 者 が 克 服 す べ き 課 題 は 尽 き ない 。

S P r i n g - 8 で は 当 初 か ら 複 数 の 軟 X 線 の ビ ャ ム ラ イ ン が 計 画 さ れ 、 熱 負 荷 問 題 が 指 摘 さ れ て い た 。 利 用 実 験 の 性 格 か ら 直 線 偏 光 が 強 く 求 め ら れ た 軟 X 線 光 化 学 ビ ャ ム ラ イ ン ( B L 2 7 S U ) に プ ラ ナ ー 型 ア ン ジ ュ レ ー タ を 採 用 し た の で は 軸 上 に 1 0 k W を 超 え る 高 次 光 成 分 が 入 射 し 、 光 学 素 子 側 で 「 理 不 尽 な 熱 負 荷 」 を 処 理 し な け れ ば な ら ず 、 非 現 実 的 と さ れ た 。 S P r i n g - 8 で ど う し て も 直 線 偏 光 軟 X 線 を と の 「 ユ ー ザ の 貪 欲 な 研 究 心 」 に 対 し て 、 北 村 、 田 中 ら は F i g u r e - 8 型 ア ン ジ ュ レ ー タ [ 2 ] を 考 案 し 、 ほ と ん どの 高 次 光 成 分 を 軸 外 に 散 ら し 、 ユ ー ザ が 本 来 使 い た い 光 エ ネ ル ギ ー と わ ず

かな高次光だけを軸上に放射させることに成功した。縦横偏光の切り替えがアンジュレータギャップ値だけで選択できるため、装置を回転させることなく偏光依存性を測定できる点も Figure-8 型アンジュレータの特徴となった。オフラインでの磁場の精密測定などツボを押さえた技術開発の結果、多くの挿入光源を当たり前のように短時間で稼動状態に持ち込む挿入光源グループの玄人技を見るにつけ、担当する軟X線ビームライン輸送チャンネルもかくありがたいものだと痛切に感じる。挿入光源のおかげで我々は S P r i n g - 8 の軟X線ビームラインの光学素子においては 1 0 0 W を超えるような熱負荷対策に頭を悩ませる必要はなくなった。

極めて安定した低エミッタンス光源と、国内外製造メーカ殿の優秀なる光学素子及び調整機構により、実験ステーションに光が抜けた初期から B L 2 7 S U ではほぼ即座に高分解能軟X線分光器の性能を垣間見ることができた [ 3 ] 。第三世代リング以降、分光器のエネルギー幅が N e や N<sub>2</sub> などの自然幅より狭い域に達し、分光器の分解能評価のために簡便に用いられてきた吸収測定では、新しい軟X線ビームラインが建設されるたびに、分光器のエネルギー幅とともに自然幅がより狭く仮定され直すという事態に至っていた。S P r i n g - 8 では吸収測定に加え、ユーザ実験のために準備された超高分解能の光電子アナライザーを用いて、自然幅フリーでビームライン分光器のエネルギー分解能を評価し、改めて 1 0<sup>4</sup> を超えるエネルギー分解能に達していることを目の当たりにできたのであった。

この手法は、吸収測定と異なり分光器を走査しないため、分光器の時間安定性評価に都合がよい。換言すると、超高分解能を必須とするユーザ利用では、エネルギードリフトが目前で「バレて」しまう。B L 2 7 S U では直線偏光の切り替えを頻繁に行うユーザが多く、F や N e の吸収端付近では、縦横偏光の違いで 8 0 W と 4 0 W 程度と、約 2 倍の入射パワーの違いがある。パワー密度からすると間接型の水冷却で十分可能であるとはいえ、光エネルギー 1 k e V 付近でエネルギー幅 0 . 1 e V が回折格子の回転角度にして約 0 . 4 秒（実際のメカは 0 . 0 1 秒 / パルス送り）の高精度位置決めが必要などと例を挙げるまでもなく、サブ秒程度のわずかな熱的歪みや、冷却水の振動を感知してしまう。ビームライン調整当初には、流路の不適切さから、水流量に依存して観測エネルギー位置が計測の都度動き、結果としてスペクトルが太ってしまう、水流の振動に起因する分解能劣化や、水流量を減らしたことによって冷却が十分でなくなり観測エネルギー位置が徐々にドリフトする問題に悩まされた。

試行錯誤の結果、（多少苦し紛れではあったものの）液体金属である I n G a で満たしたバスを球面鏡や回折格子チャンバ内に設ける方法を採用した。いくつかの放射光施設で実証されていた [ 4 ] が、光学素子表面の汚染への危惧や取扱の難しさから一般的とは言いがたい。1 0<sup>-7</sup> P a 以下の超高真空中での光学素子の十分な冷却には（1）熱接触抵抗の低減（いかにしっかり密着させるか）と、（2）微妙な位置決め調整しろ確保と光学素子保持変形の極小化（いかにしなやかにホールドするか）を両立させる点が高分解能分光器の冷却に重要である。入射パワーや光学素子の役割に応じて各部材の満たすべき熱伝導度が算出され、従来用いられた銅網線による接触程度では不十分であることは自明であった。そこで「しなやかに且つしっかりと」保持するために、I n G a のバスを媒介として、冷却水からの振動を低減させ、かつ位置決め調整機構による調整

しろを設けた。光学素子本体を InGa に浸すのではなく、適切な熱伝導度の冷却プレートを紹介した。プレートは真空チャンバの外で光学素子に対して密着固定させ、光学素子ホルダへの固定を行い、変形量を Long Trace Profiler などオフライン機器で計測しつつ、許容の形状誤差範囲内に収まるように組み立てた。また、InGa はプレート材である Al や Cu と反応するため、厚さ、使用温度に対して反応性を試験した上で Ni メッキや Au メッキを施した。その結果、エネルギードリフトを 1/10 ~ 1/20 程度まで低減可能とした。

InGa バスによる冷却は一定の成果をあげ、現在も BL27SU の冷却方法として使われている。しかし、大きなエネルギードリフトが見えなくなると 10meV 程度の新たな不安定要因が目立つようになり、長時間積算に耐えるよりいっそうの安定性が求められている。いつでも、どこでも、誰にでも、Spring-8 の軟 X 線ビームラインがもつ本来の性能を堪能いただけるように努力を続けているところである。皆様のご利用を心よりお待ちしております。

[1] <http://www.spring8.or.jp/ENGLISH/facility/bl/>

[2] <http://www.spring8.or.jp/ENGLISH/facility/bl/insertion/IDtech/IDpres/fig8.html>

[3] [http://www.spring8.or.jp/j/user\\_info/sp8-info/data/5-4-2k/5-4-2k-2-p256.pdf](http://www.spring8.or.jp/j/user_info/sp8-info/data/5-4-2k/5-4-2k-2-p256.pdf)

[4] Y. Kitajima et.al., Rev. Sci. Instrum. **63** 886 (1992)

## 「第 7 回 X 線結像光学シンポジウム」案内

編集部

標記のシンポジウムが仙台で開催されます。

日時 平成 15 年 11 月 26 日 (水) 13:30~11 月 27 日 (木) 15:00 (予定)

場所 東北大学金属材料研究所 講堂および会議室

プログラム 招待講演およびポスター発表

ポスター発表申込締切 10 月 14 日、 予稿集原稿締切、参加申込締切 10 月 27 日

参加費 一般 2,000 円、学生 無料； 懇親会費 3,000 円

申込先 東北大学多元物質科学研究所 渡辺 誠 (宛先、下段参照)

## 「The 7<sup>th</sup> International Conference on the Physics of X-Ray Multilayer Structures」 (PXRMS-2004) 案内

編集部

平成 16 年 3 月 7 日 (日) ~ 3 月 11 日 (木) まで標記の国際会議が北海道ルスツリゾートで開催されます。詳しくは責任者の山本正樹氏 (TEL:022-217-5388, FAX:022-217-5389, e-mail: yamamoto@tagen.tohoku.ac.jp) にお尋ね下さい。

---

発行 X 線結像光学研究会 (代表 名古屋大学大学院理学研究科物理学教室 山下広順)

編集部 東北大学多元物質科学研究所 多元解析研究部門表面プロセス解析研究分野 渡辺 誠

〒980-8577 仙台市青葉区片平 2-1-1

TEL:022-217-5376, FAX:022-217-5379

E-mail: watamako@tagen.tohoku.ac.jp