

コヒーレント軟X線とフレネル・ゾーン・プレートを用いた 金属および酸化物超伝導体の極小角散乱・回折像観察

鈴木 拓^a, 吉塚 和治^a, 鈴木 芳生^b, 竹内 晃久^b, 高野 秀和^b, 上杉健太郎^b,
小林啓介^b, 高田恭孝^c, 大浦正樹^c, 原田慈久^c, 竹内智之^d, 辛 埴^{c, e}
^a北九州市立大学・国際環境工学部, ^b高輝度光科学研究センター
^c理化学研究所, ^d東京理科大, ^e東京大学物性研究所

背景

ナノスケールでの物質物性の振る舞いがバルク試料のものと異なる場合があることは広く知られている。ナノオーダーの周期構造が固体物性にもたらす影響を調べることは非常に重要であると思われるが、従来の電子線回折やX線回折を用いた構造解析法では、ごく小さな周期構造のバルク統計情報のみを得る結果となっていた。

近年、第三世代放射光源から得られる高コヒーレントX線光により、X線干渉実験が非常に容易になっている。Speckle実験は比較的新しい実験手法であるが、ナノオーダーの周期的またはランダムなドメイン情報を取り出し得るという点で、他の方法にない特徴を有する。

先行しているspeckle実験はいずれもアンジュレータより得られる高輝度光を20~5 μ m径のピンホールで絞って試料に入射しているため、S/N比が悪く、時間分割実験や高コントラスト像を得ることが非常に困難であった。

著者らのグループはSPring-8BL47XU、20XUにおいて、フレネルゾーンプレート(以下FZPと略称)による集光光学系を用いたspeckle実験を行い、先述の欠点を解消することに成功した。この実験は直径100ミクロン、焦点距離16cmのFZPを用いることで、 ϕ 5 μ mピンホールを用いる場合と比べ50倍以上のフラックスを得ることができた。また、speckle実験では、試料への入射ビーム径とその中に含まれる散乱体ドメインまたはパーティクル数が

重要であるが、FZPを使用すればサブミクロンオーダーのビームが容易に得られるため、一桁小さなサイズの散乱体ドメインから得られるspeckle像観察を行うことができた。

これらの研究は全て8 kv付近の硬X線領域で行われてきた。硬X線回折speckle観察実験では既に物性相転移に伴うspeckle像の周期的構造変化を捉えているが、磁性や電子密度等に敏感な軟X線領域で、より物性と密着した情報を得ることを目的として本実験を行った。

実験

実験はBL27SUの最下流ステーションに外注製作した軟X線回折・散乱計を用いて行った。FZPはNTTアドバンステクノロジー社製で、最外輪帯幅0.16 μ m、3100ゾーン、直径2mm、焦点距離47cm(1.7keV)のものを用いた。試料は小角散乱用としてMgO粉末(ϕ 0.01、0.05、0.1、0.2 μ m)を用いた。また、BaTiO₃に対しX線を斜入射し、全反射speckleを

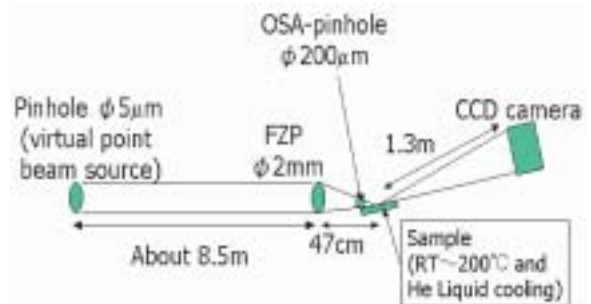


図1 全反射speckle光学配置図。5 μ mピンホールはBL27SU-M3ミラー集光点に置いた。



図2 装置外観図。総重量は約1200kg。
350l/minと450l/minのターボ分子ポンプ
2台+オイルレススクロール1台で真空
到達度は 4.4×10^{-6} (ベーキング無)。

行った。光学配置図を図1に、装置外観写真を図2に示す。

検出器は浜松フォトンクス社製軟X線用CCDカメラを用いた。同カメラはリレーレンズとCCD部分を交換することで種々の空間分解能及びフレームレートを持つ。今回は 1024×1024 pixel、1フレームあたり数msec～30minの露光が可能なCCDを使用し、リレーレンズは空間分解能 $13.2 \mu\text{m}$ のものを使用した。

結果

図3(a)～(e)に室温、373K、393K、450KのBaTiO₃の全反射speckle像を示す。

(a)の下部、円状の影はBaTiO₃表面で全反射した像である。斜め上方へ縞状の構造が写っており、これはBaTiO₃表面散乱によって得られたspeckleパターンである。キュリー点付近の403K前後で反射像が大幅に乱れ、細分化し、最後には完全に消滅する様子がはっきり捉えられた。円状の影は集光光学系から入射された ϕ 約 $0.3 \mu\text{m}$ の投射像であり、室温と450Kではほぼ一様で、373～403Kでは太い縞模様から細分化された縞状像を示した。

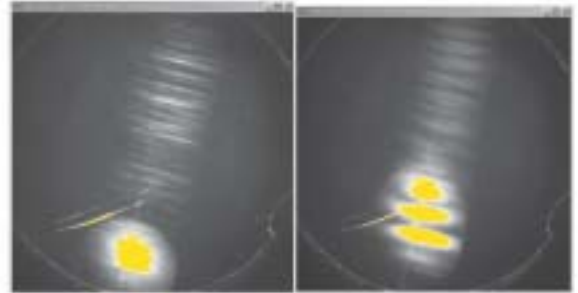
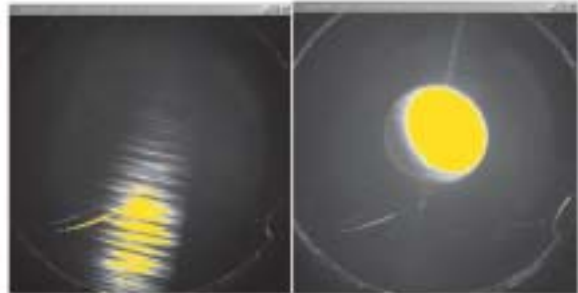


図3 (a) 室温 (b) 373 K



(c) 393 K (d) 450 K

今後の課題

現時点では試料位置の温度校正が不正確なので早急に校正を行う予定である。本実験により相転移には今まで明らかでなかった長周期構造揺らぎを伴う場合があることがはっきりしたので、多様な試料へ本法を応用したい。また、表題とした酸化物超伝導体での実験が今回は時間切れとなり出来なかったため、再挑戦したいと考えている。