

2012 年度修士論文要旨

X 線自由電子レーザーSACLA を用いた Si 単結晶薄膜の 超高時間分解 Bragg コヒーレント X 線回折測定

関西学院大学大学院理工学研究科
物理学専攻 高橋功研究室 中谷 貴司

X 線回折は物質の結晶構造を直接的に観測するために広く利用されている手法である。Spring-8 などの第 3 世代大型放射光施設の登場により、高輝度、短パルス性をもつ X 線を得ることができるようになり、時間分解 X 線回折法を用いて、相変化材料等の反応中の構造変化や結晶格子ダイナミクスの研究が可能になった。さらに 2012 年には第 4 世代と言われる X 線自由電子レーザーSACLA が完成し、超高輝度で完全空間コヒーレンスを持つフェムト秒パルス X 線が得られるようになり、より高い時間分解能となる時間分解測定が可能となった。その利用研究として、ピコ・フェムトダイナミックイメージングと生体分子の階層構造ダイナミクスが掲げられている。

本論文では、SACLA を用いてサブミクロンサイズの単結晶における結晶格子の超高速変化を捉える試みとして、半導体材料である厚さ約 100 nm の Si 貼り合わせ結晶にバンドギャップを超える光子エネルギーを持つ励起レーザーを照射した際の超高速格子ダイナミクスの観測を目的としている。その手法として、ポンプ・プローブ法とコヒーレント X 線回折法を組み合わせた超高時間分解 Bragg コヒーレント X 線回折法を試みた。また、SACLA では大強度を持つパルス X 線が得られるため、シングルショット測定によって不可逆過程や破壊過程の過渡的な構造情報を観測することができる。そこで、非対称反射配置を組むことで、試料固定のままシングルショットで X 線回折パターンを得て、薄膜結晶の表面方向の格子の動きを捉えた。一方で、SACLA は SASE-XFEL であるため、パルスごとのビーム安定性が蓄積リング放射光に比べて高くない。そのため、そのショットごとの入射 X 線ビームの状態を記録しながら、試料の構造情報が得られるよう、シングルショット回折パターンを取得した。解析では、得られたシングルショット回折パターンのうち、ビームの位置が中央近傍のものと、強度が一定以上のデータセットの抽出を行った。Si 結晶薄膜の回折パターンの時間依存性では、5 ps から 20 ps まで回折パターンの主極大の幅が約 15% 増大し、数秒後には元に戻る可逆的变化を観測した。また、散乱パターンの傾きの過渡的变化も観測された。回折幅の広がり、格子の過渡的歪みあるいは結晶格子の厚み、すなわち層数の減少と考えられる。積分強度や、散乱パターンの副極大の強度についても定量的なデータが得られれば、格子の過渡的な状態の特定が可能になると期待できる。