

X線反射率曲線の時分割測定法の開発と応用

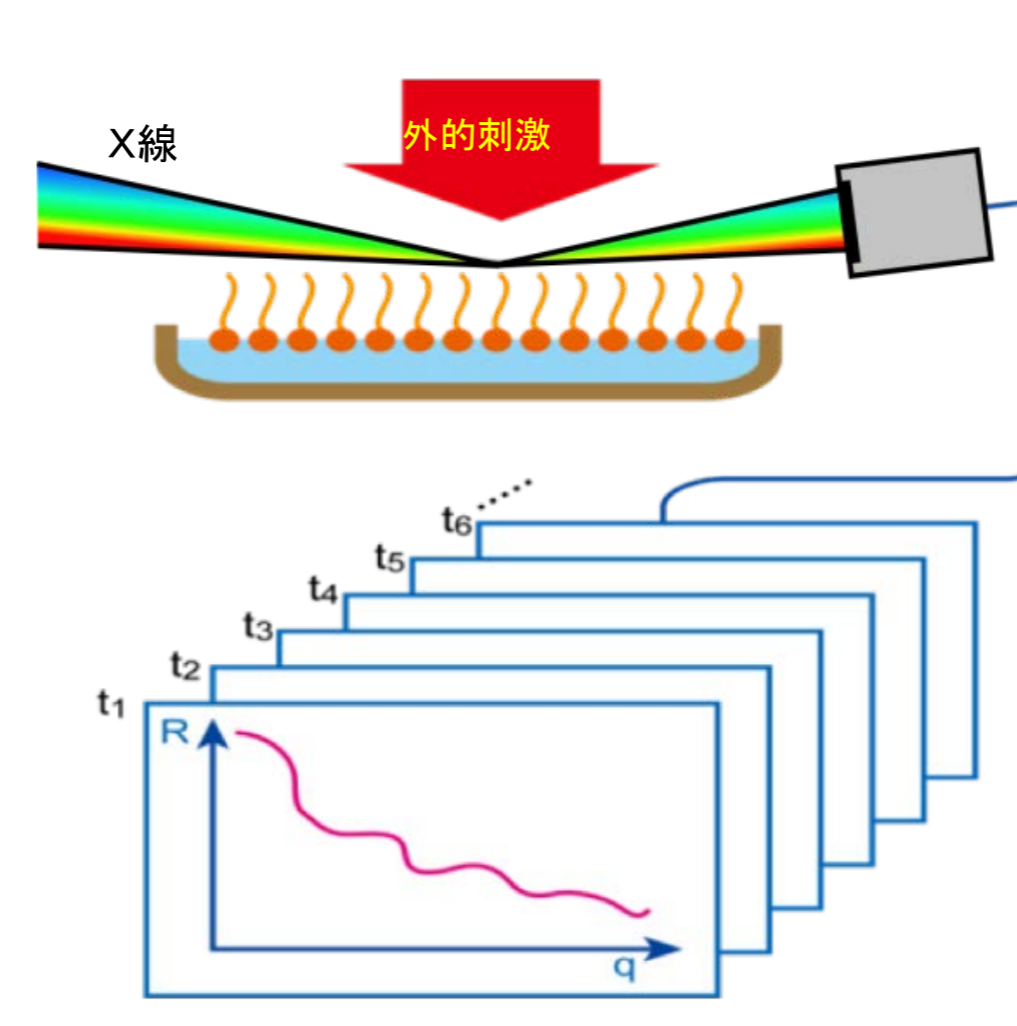
Development of Time-Resolved X-Ray Reflectometry and Its Applications

松下 正 (Photon Factory, KEK)
荒川悦雄 (東京学芸大学)
Wolfgang Voegeli (東京学芸大学)
岩見 隆太郎 (東京学芸大学)
亀沢 知夏 (東京学芸大学)
齋藤 広和 (東京学芸大学)
矢野 陽子 (近畿大学)
西 直哉 (京都大学)
池田 陽一 (京都大学)
白澤徹郎 (東京大学)
高橋敏男 (東京大学)
山田 容子 (奈良先端大)
鈴木 充朗 (奈良先端大)

S2型課題: 2013S2-001

有効期間: 3年間(2013.4-2016.3)

実験ステーション: PFAR-NE7A・NW2A
前回PFシンポジウムからこれまで使用したビームタイム
NE7A 2015年6月20日~6月30日(10日間)
2015年11月8日~11月17日(9日間)
2016年3月9日~3月14日(5日間)
NW2A 2015年5月31日~6月8日(8日間)
2015年11月13日~11月20日(7日間)

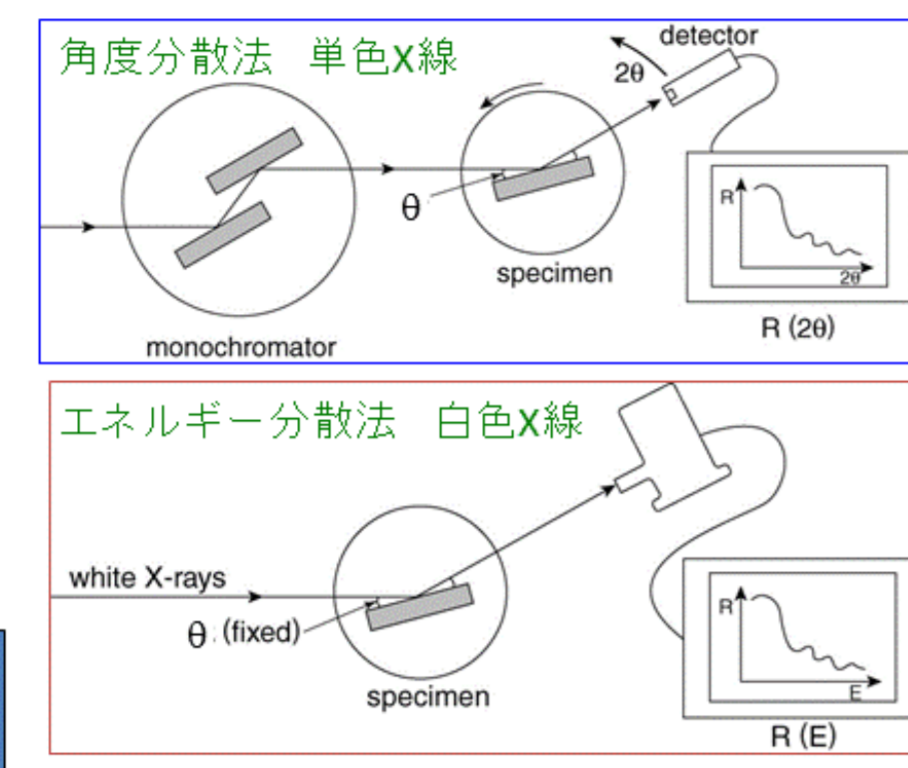


研究の目的

鏡面X線反射率曲線の時分割測定をし、外的刺激による薄膜や表面・界面の構造変化をサブ秒〜ミリ秒の時間分解能で実時間追跡することを実現すること、を目的としている。より具体的にはこれまでの実績を踏まえて方法論を確立しユーザーフレンドリーな装置技術および実験環境を整えユーザーを受け入れることができる水準まで技術の熟成度をあげるとともに、実際にいくつかの興味あるサンプルを対象に時分割X線反射率曲線の実例を示すことを目指す。

① X線反射率曲線

$$R(q), q=4\pi \sin(\theta)/\lambda$$



これまでの測定法では、測定時間
数分 ~ 数十分

薄膜、表面・界面の静的構造研究に
広く利用

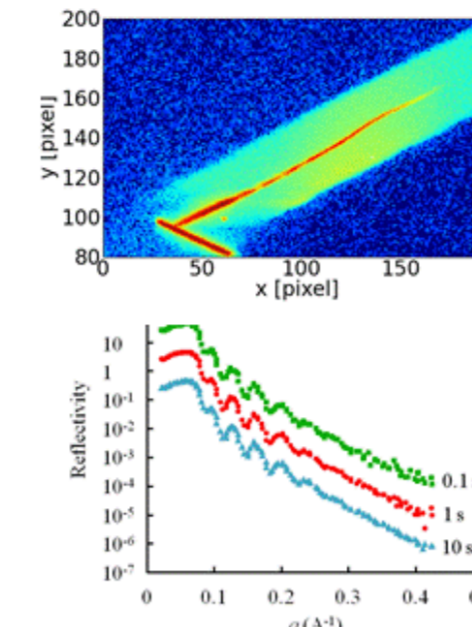
臨界面 → 密度
振動の周期 → 膜厚
振動の振幅 → 各層の密度差
強度減衰 → 界面粗さ

表面垂直方向の電子密度分布

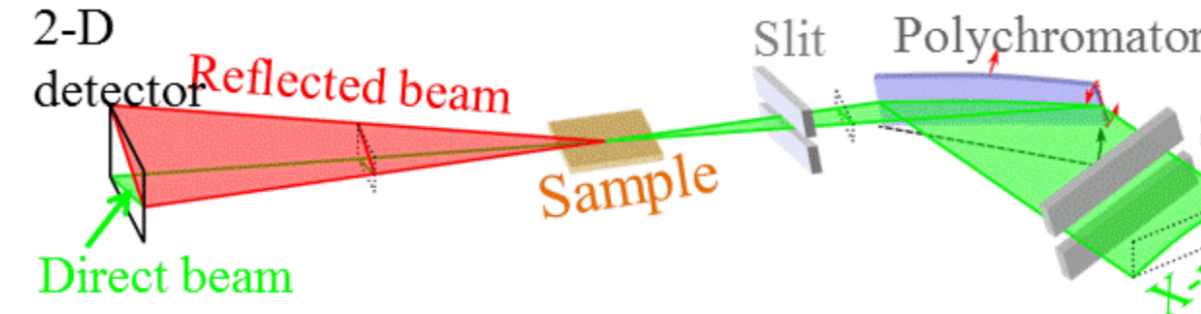
Scopusで検索	2000-2005	2006-2011
X-ray reflectivity	2076	2238
X-ray reflectivity & time resolved	35 (1.7%)	51 (2.3%)
X-ray reflectivity & in-situ	160 (7.7%)	242 (10.8%)

② Simultaneous multiple angle-wavelength dispersive method

- Time resolution: sub-seconds – milliseconds (irreversible reactions)
- No mechanical movement of any components of the system during the measurement
- Whole q range measured at once with a 2-dimensional pixel array detector (PILATUS 100K)
- Sample surface to be horizontal → liquid surfaces

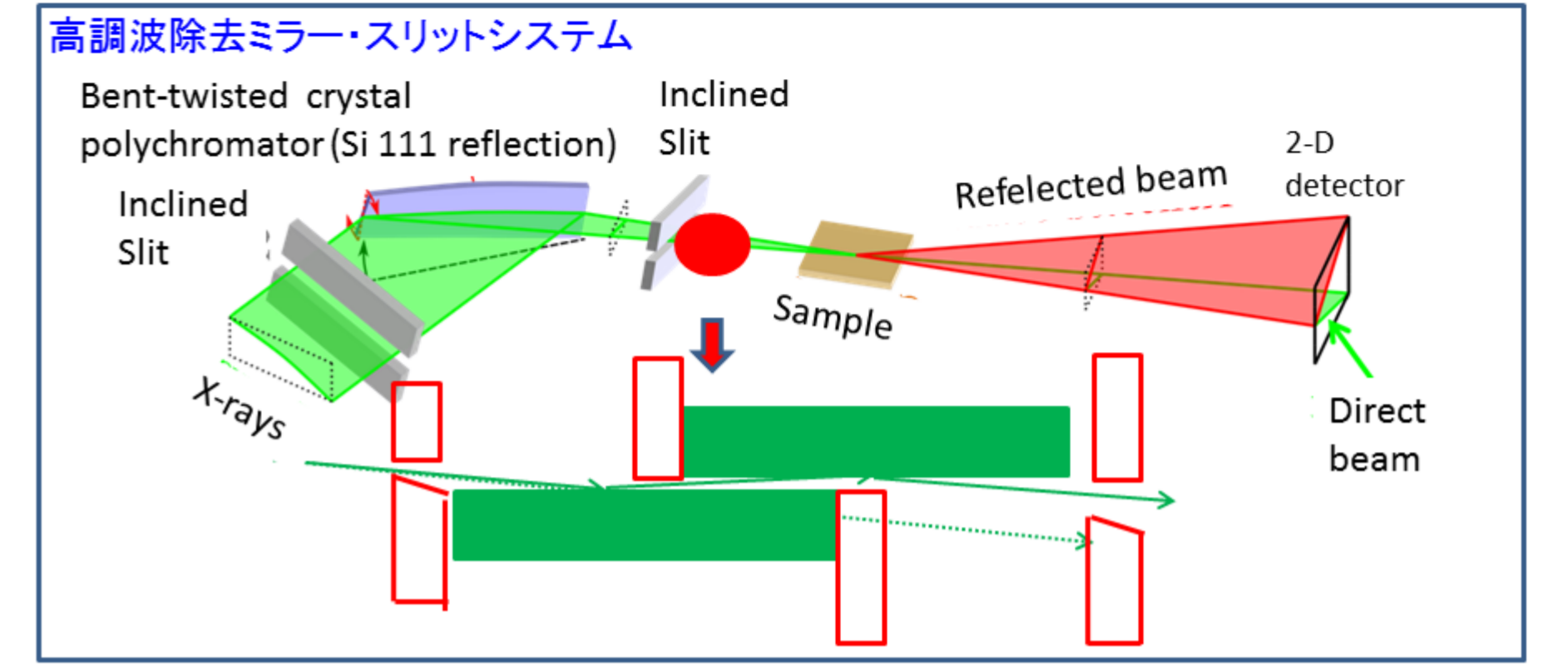


- Momentum transfer $q = 4\pi \sin\theta/\lambda = 4\pi \sin\theta E/(hc)$
- θ and E/λ change as a function of beam direction toward the focus F s
- A bent-twisted polychromator produces a convergent X-ray beam with a range of incident angles θ and energies E /wavelengths λ .



③ 2015年度に行ったこと

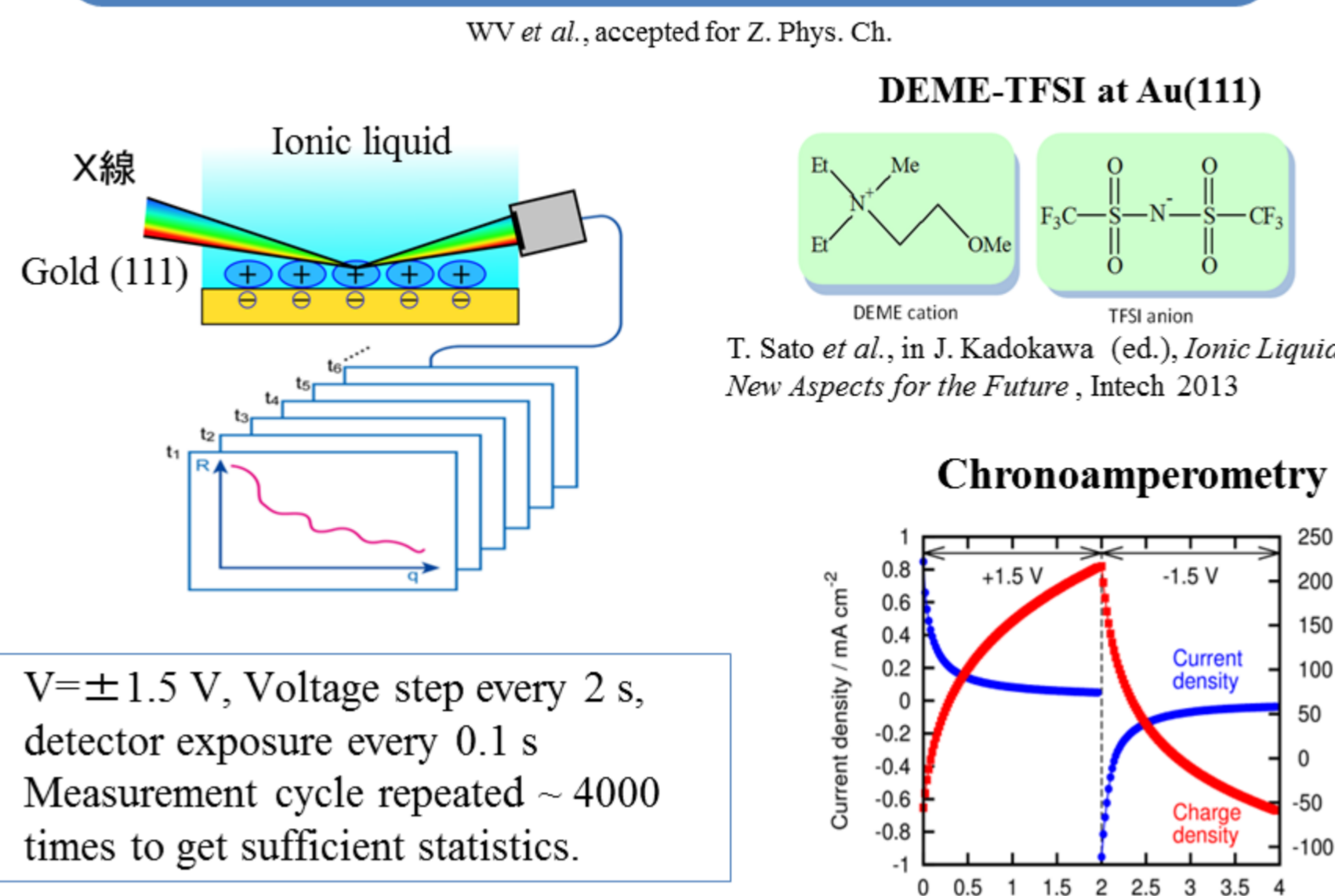
- 高調波除去ミラー・スリットシステムの改良
- 光応答高分子18膜への紫外光の照射時の湿度制御
- 光吸収/反射スペクトルとX線反射率曲線の同時計測
- 実験室X線源(CuKα1)によるX線反射率曲線の時分割測定
オレイン酸を塗布した酸化チタン表面への紫外光照射効果
- アンジュレータ単色光を用いた反射率曲線の測定(試料、検出器の機械的運動なし)
- イオン液体-金界面における電圧変化と電気2重層の形成と秩序相の形成
- ペンタセンダイオキソン薄膜への光照射によるペンタセン薄膜への変化
- タンパク質の気液界面への吸着過程の追跡



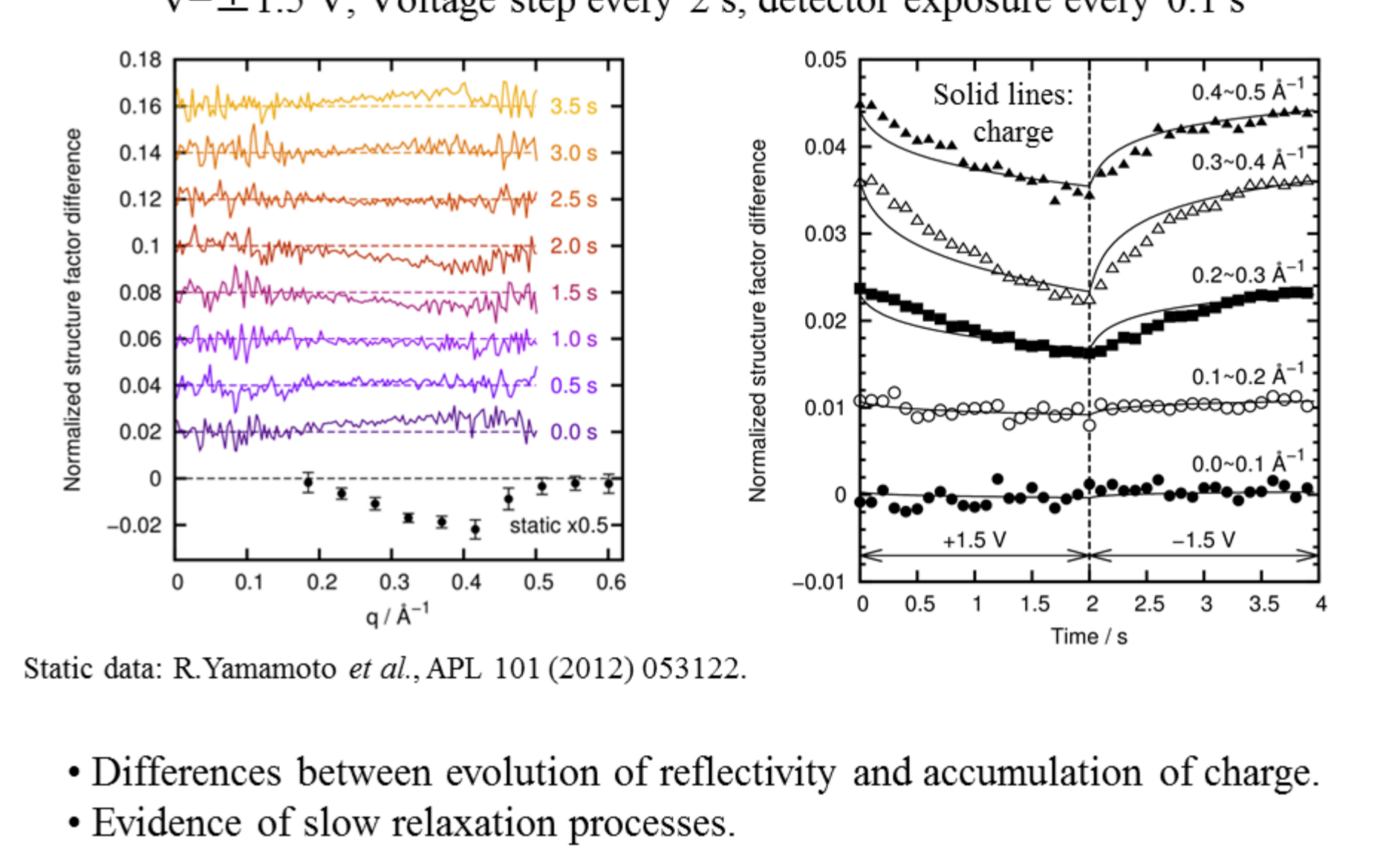
④ Salt effect on protein adsorption at an air-water interface

未発表データ

⑤ Time dependent study of electric double layer formation at an ionic liquid - gold interface



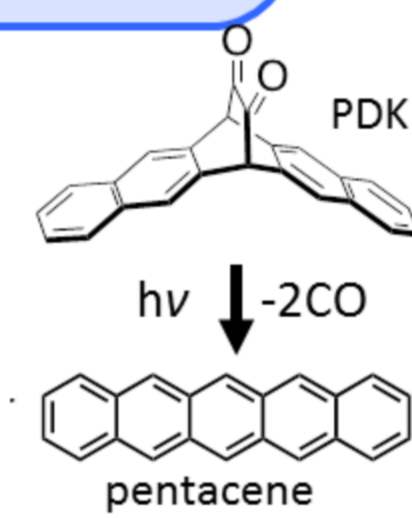
⑥ Exp. 1: X-ray reflectivity results (4 s cycle)



⑦ In-situ observation of photoconversion PDK → Pentacene

未発表データ

- Spin-coating of soluble precursor + photoconversion to pentacene is a low-cost production method for pentacene thin films.
- This research: Observe structural changes during photoconversion



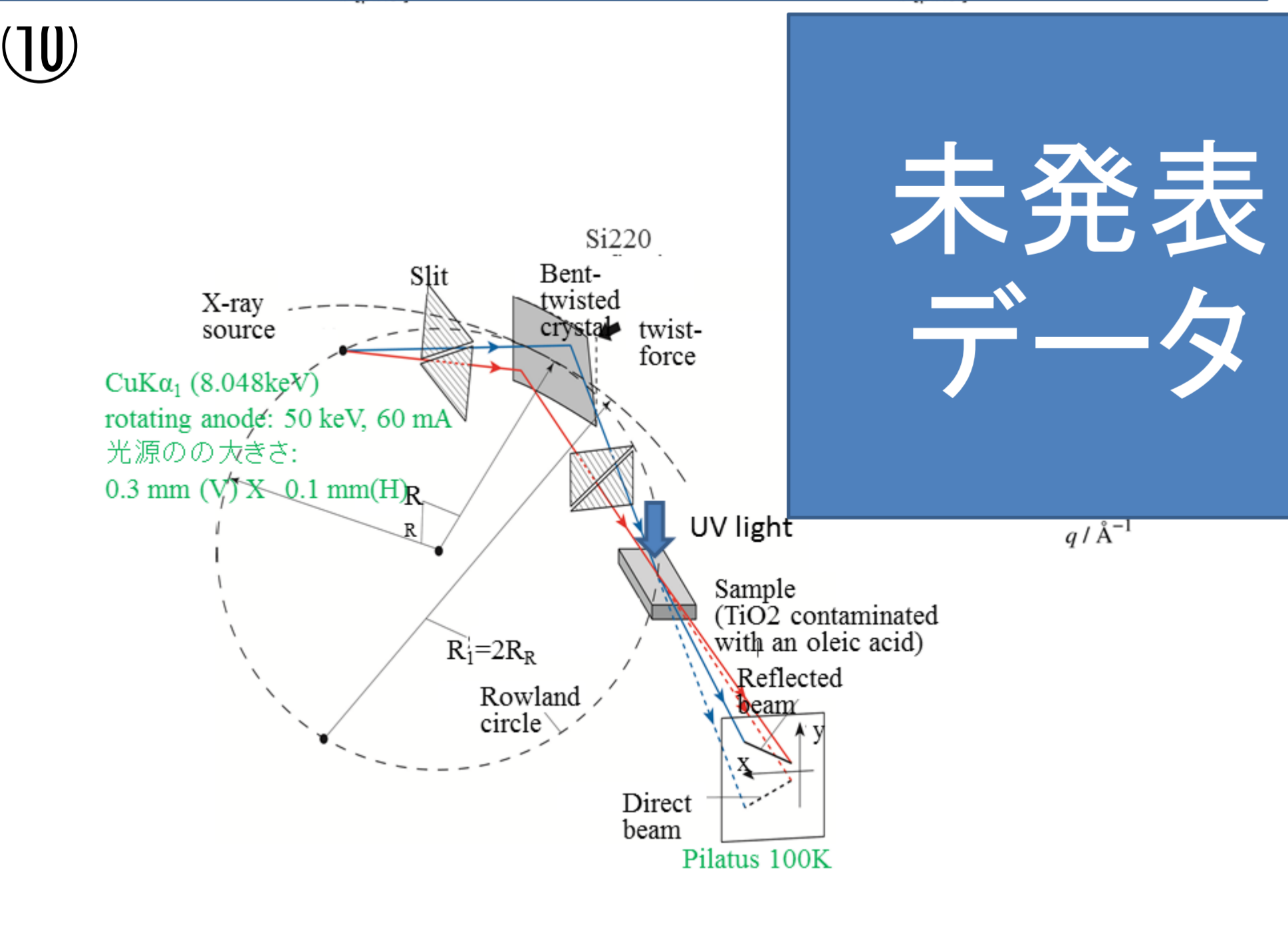
⑧ In-situ observation of photoconversion PDK → Pentacene

未発表データ

- Simultaneous observation of Bragg peak and X-ray reflectivity
- Thickness fringes disappear → Film becomes rough
- Pentacene Bragg peak appears → Crystallization of pentacene

⑨ Reflectivity fitting results and Bragg peak

未発表データ



未発表データ

未発表データ

⑬ Vertical beam expander(V字型 チャンネルカット結晶)

未発表データ

⑭ 今後の課題

- 高調波除去ミラーの効果の定量的評価(2016年3月の実験結果)
- 装置立ち上げ・調整時間の短縮
- 実験室X線源(特性X線)を使つての時分割測定の例を増やす。
- 第3世代アンジュレータ光源からの単色X線の利用(2016年4月にSpring-8で予備実験)
- X線FEL利用の検討
- これまでの成果を論文化
- 新しいユーザー・新しい試料の発掘(例えば「3D活性サイト」など)
- ピクセルサイズのより小さな(55μm)検出器の導入(今のものは172μm)

発表年	発表者	発表誌	発表日	発表種別	発表種別
1	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
2	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
3	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
4	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
5	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
6	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
7	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
8	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
9	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
10	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
11	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
12	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
13	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
14	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
15	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
16	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
17	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
18	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
19	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
20	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
21	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
22	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
23	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
24	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
25	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
26	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
27	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
28	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
29	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
30	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
31	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
32	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
33	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
34	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
35	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
36	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
37	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
38	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
39	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
40	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
41	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
42	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
43	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
44	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
45	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
46	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
47	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
48	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
49	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)
50	Voegeli, Wolfgang, 斎藤 広和, 岩見 隆太郎, 高橋敏男, 矢野 陽子	日本物理学会 第51回年会(2015)	2015年10月24日	口頭発表	日本物理学会 第51回年会(2015)