

(様式第5号)

真空紫外線蛍光ホログラフィーを用いた軽元素のまわりの  
原子イメージ  
Atomic images around light elements by vacuum ultraviolet fluorescence  
holography

細川伸也<sup>1</sup>、橋本由介<sup>2</sup>、中島陽一<sup>1</sup>  
Shinya Hosokawa,<sup>1</sup> Yusuke Hashimoto,<sup>2</sup> Yoichi Nakajima<sup>1</sup>

<sup>1</sup>熊本大学、<sup>2</sup>奈良先端科学技術大学院大学  
<sup>1</sup>Kumamoto University, <sup>2</sup>Nara Institute of Science and Technology

- ※1 先端創生利用（長期タイプ）課題は、実施課題名の末尾に期を表す（Ⅰ）、（Ⅱ）、（Ⅲ）を追記してください。
- ※2 利用情報の公開が必要な課題は、本利用報告書とは別に利用年度終了後2年以内に研究成果公開（論文（査読付）の発表又は研究センターの研究成果公報で公表）が必要です（トライアル利用を除く）。
- ※3 実験に参加された機関を全てご記載ください。
- ※4 共著者には実験参加者をご記載ください（各実験参加機関より1人以上）。

## 1. 概要（注：結論を含めて下さい）

本研究では、軽元素の発する真空紫外線や軟X線などの低エネルギーの蛍光線を対象としたホログラム測定を試み、軽元素のまわりの3次元（3D）局所原子イメージを構築することを目指とする。今回は、これまでに完成した装置の動作確認を行う予定であったが、検出器の不調が発生し、目的は達成できなかった。

### (English)

In this study, we aim to carry out holography experiments with low-energy fluorescent photons of vacuum ultraviolet or soft x-ray emitted from light elements, and reconstruct three-dimensional atomic images around light elements. In this beamtime, we intended to perform the operation checks for the well-prepared holographic equipment. Due to a disorder of the detector, however, the present purpose was not completed.

## 2. 背景と目的

ワイド・ギャップ半導体をはじめとする軽元素を含む材料の物性について、原子構造解明の立場からの研究の大きな障害となっているのは、これまで一般的に行われてきたX線回折やXAFS実験では必ずしも十分な構造情報を得られていないことである。回折では長距離周期性を基礎としているため、局所構造や不純物の観測に大きな難がある。XAFSを用いればそれらの情報は得られるが、第2、3近接原子くらいまでの近距離での一次元的な情報しか得られないため、既に確立したモデルがなければ必ずしも満足な結果が得られない。本研究課題では、第3の原子構造決定手段である蛍光X線ホログラフィー(XFH)法に、高真空下で蛍光真空紫外線、軟X線を観測する機能を拡張することによって、ワイド・ギャップ半導体を構成する個々の軽元素のまわりの局所構造を、3Dイメージとして視覚的に明らかにし、特に機能を発揮する不純物のまわりのクラスター形成や格子ひずみなどの秩序構造について、徹底した原子構造探索を行いたい。

## 3. 実験内容（試料、実験方法、解析方法の説明）

申請者らが行ってきたXFH法は、特定元素のまわりの局所構造を、特定のモデルを必要としないデータ処理で、3D原子イメージとして描き出すことができるなど、原子構造決定法として優れた特

長を持つ[1]。しかしながら、軽元素が放出できる蛍光線は真空紫外線あるいは軟 X 線のエネルギー領域に限定されており、空気中の実験では吸収による蛍光エネルギーの制限により、現在のところ K よりも重い元素にしか適用できない。

現在行っている XFH の測定原理を図 1(a)-(c)に示す。(a)のように、結晶にある元素のある X 線吸収端より高いエネルギーの X 線を入射すれば、その元素から蛍光 X 線が生じる。このときの直接入射する X 線（標準波）と周囲の原子で散乱を受け、球面波としてその元素に到達する物体波は干渉を起こして、中心原子に到達し、蛍光線を放出する。入射 X 線に対して結晶を回転させれば、この干渉が変化し、(b)のような蛍光 X 線強度の変調（ホログラム）が 1000 分の 2-3 程度の大きさで観測される。方法論的には目的の原子が内部検出器の役割を果たし、外部のどこに検出器を置いても同一のホログラムが得られる。このホログラムに簡単なフーリエ変換を施せば、モデルなしに(c)のような 3次元原子像を一義的に得ることができる。

ここで重要なことは、ターゲットである軽元素のまわりの原子配列は高いエネルギーの入射 X 線の干渉によって角度変化として情報化され、ターゲット元素からのホログラム信号は、エネルギーによらず（可視光あるいは光電子であっても）その元素に特徴的なものであれば良い。これまでは空気中でもあまり吸収されない硬 X 線だけを計測してきたために大きな原子番号の元素に測定は限られてきた。本研究では軽元素の発する真空紫外線や軟 X 線など、低エネルギーの蛍光線を対象としたホログラム測定を試みる。

図 2 に低エネルギーの蛍光線を検出するために考案した真空条件下の蛍光軟 X 線（あるいは真空紫外線）ホログラフィー（SXFH）測定装置の模式図を示す。10 keV 程度の入射 X 線は、0.2 mm 厚の薄い X 線窓を通して真空槽に導入する。天頂角  $\theta$  および方位角  $\phi$  を変化させるため、真空系への回転導入および真空仕様のステッピング・モータをそれぞれ利用した。

通常 XFH 測定では、検出系に大きな角度変化を必要とするが、真空槽は小さく、大きな駆動部分を導入することは容易ではない。そこで、エネルギー分解できるシリコンドリフト検出器（SDD）を軸のほぼ延長上に設置し、 $\theta$  の変化による蛍光軟 X 線あるいは蛍光真空紫外線の測定条件にあまり変化が起こらないようにした。発生した蛍光線は湾曲ミラーを通して、他の重元素から発生する可能性のある硬 X 線成分を除去するとともに、集光を行って検出した。エネルギーの低い蛍光線を検出するため、SDD の窓を取り外した。

#### 4. 実験結果と考察

現在までのところ、入射 X 線として、九州シンクロトロン光研究センターの BL15 ビームラインを利用して、偏向電磁石からの放射光を用いた動作テストを行った。図 3 は Al を試料として用いたときの SDD 検出器で測定した蛍光軟 X 線スペクトルを示す。測定時間はおよそ 30 s で Al  $K\alpha$  のピークでおおよそ 800 カウントの信号を得た。 $K\alpha$  も  $K\beta$  もホログラム信号として利用することができるので、この 2 つのピークの合計でおおよそ 5000 cps のデータを得ることができる。これはホログラム・データとしては 1 桁小さい値であるが、今後測定に 2 桁は強度の高いアンジュレータ・ビームラインからの放射光源を用いれば、十分すぎる蛍光線強度が得られる。

しかしながら、動作テストを始めた直後に SDD 検出器に

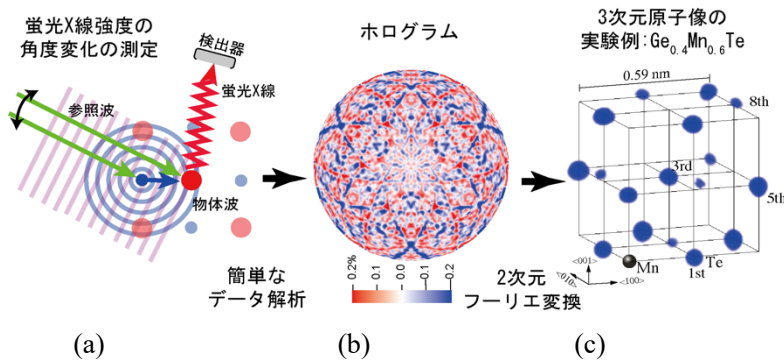


図 1: XFH の測定原理

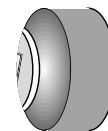


図 2: 真空条件下の SXFH 測定装置の模式図

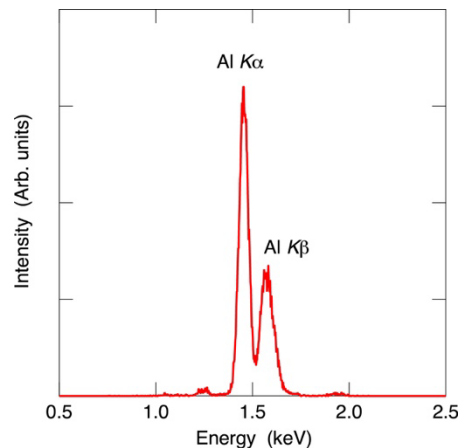


図 3: Al の蛍光軟 X 線のスペクトル

放電が起こったようで、図3のようなスペクトルを得る事ができなくなった。これは真空容器の真空度の悪化あるいは軸出し用のレーザー光によると考えている。したがって、予定していたホログラフイー装置の動作確認は断念した。

## 5. 今後の課題

今後はまず、SDD 検出器の修理を行う必要がある。それが終われば、装置の動作確認を継続し、Al、Mg あるいは Si を含む機能性材料を対象して、これらの軽元素のまわりの局所原子配列、格子ひずみ、あるいは不純物クラスターの情報を得て、その機能との関連を明らかにしたい。さらに、科研費基盤 B の援助を得て、5 K までの超低温での XFH 測定を可能とするクライオスタットの開発を行った[2]ので、その技術を SXFH にも適用した超低温 SXFH の測定が可能となるように開発を続けていきたい。

## 6. 参考文献

[1] K. Hayashi, N. Happo, S. Hosokawa et al., *J. Phys.: Condens. Matter* **24**, 093201 (2012).

[2] K. Hayashi, N. Happo, and S. Hosokawa, *Rev. Sci. Instrum.*, submitted.

## 7. 論文発表・特許 (注: 本課題に関連するこれまでの代表的な成果)

該当ありません。

## 8. キーワード (注: 試料及び実験方法を特定する用語を 2~3)

蛍光ホログラフイー、真空紫外線、軟 X 線、超高真空容器、軽元素

9. 研究成果公開について (注: ※2に記載した研究成果の公開について①と②のうち該当しない方を消してください。また、論文(査読付)発表と研究センターへの報告、または研究成果公報への原稿提出時期を記入してください。提出期限は利用年度終了後2年以内です。例えば2018年度実施課題であれば、2020年度末(2021年3月31日)となります。)

長期タイプ課題は、ご利用の最終期の利用報告書にご記入ください。

② 研究成果公報の原稿提出

(提出時期: 2022年 3月)