

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 27 日現在

機関番号：84502

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2012～2014

課題番号：24540341

研究課題名(和文)放射光・核共鳴吸収を利用した元素選択的3D原子配列測定法の開発

研究課題名(英文)Development for Three dimensional and element selective atomic measurements by inelastic nuclear resonance scattering

研究代表者

岡田 京子 (OKADA, Kyoko)

公益財団法人高輝度光科学研究センター・その他部局等・研究員

研究者番号：70399616

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：SPring-8 BL09XUにおいて、 ^{57}Fe の共鳴エネルギー14.4keVのX線をヘマタイト結晶($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$)に入射させ、電子散乱起源の蛍光X線のホログラムパターンと、寿命100nsの ^{57}Fe による核共鳴起源の遅延蛍光X線によるホログラムパターンの2種類を取得した。その結果、遅延蛍光X線によるホログラムは、コッセル線を持つ蛍光X線によるホログラムとは異なるパターンを持つことがわかった。

研究成果の概要(英文)：We have measured the two-type angular distributions of Fe-K X-ray emissions with different time windows from a single-crystalline hematite ($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$) with enriched ^{57}Fe irradiated by incident 14.4keV gamma-rays at BL09XU/SPring-8. Gamma-rays of 14.4 keV can excite ^{57}Fe nuclei with a lifetime of 100 ns. We found that the time-delayed angular distribution component of Fe-K X-rays has a different pattern compared with angular distributional component of Fe-K from fluorescent X-ray holographic pattern with Kossel lines.

研究分野：物性材料研究・新規測定手法開発

キーワード：斜入射遅延蛍光X線物理・核共鳴散乱 核共鳴散乱 原子核 原子 放射光 転換電子 遅延蛍光X線
ホログラフィー

1. 研究開始当初の背景

放射光核共鳴散乱とホログラムを組み合わせた測定法は、今迄のホログラフィー測定法とは異なり、原子の化学状態をも明らかにできる可能性があるという新しい特徴を持つ。この世界初の実験は放射性同位体線源を用いて行われた(P. Korecki *et al.*, Phys. Rev. Lett., 79(1997)3518.)。一方、近年の第三代放射光の出現により、原子核励起を利用する放射光核共鳴散乱法の測定技術開発やこの手法を利用した研究が進んだ。放射光は、線源より数億倍以上も高輝度でエネルギーが可変である。このため、放射光を利用すればより詳細な物理データがより短時間で得られると期待できる。このため、研究代表者はホログラフィー手法を応用した新たな3次元(3D)原子配列測定法を研究することとした。

2. 研究の目的

材料の原子構造解析は精力的に研究されている分野である。既に研究されている分野ではあるが、研究代表者はホログラフィー手法を応用した新たな3D原子配列測定法、つまり、放射光核共鳴散乱とホログラムを組み合わせた測定法を研究する。この理由は以下である。これは今迄の測定法とは異なり、原子の化学状態も明らかにできると期待できる。また、物性の機能発現メカニズムの情報も明らかにできる可能性があると期待できる。メスbauer効果と同様、原子核励起を利用する本手法では、共鳴線を共鳴吸収する原子核の状態と同時に、この原子核周辺の電子状態や、この原子に隣接する同種・異種原子の状態も解明できる可能性があると期待できる。そこで、この新たな3D原子配列測定法の樹立の為に、測定系を整備し、解析手法も確立することを研究目的とする。本科研費の期間ではAvalanche Photo Diode(APD)検出器の最適化と検出効率の向上を最優先課題として取り組む。

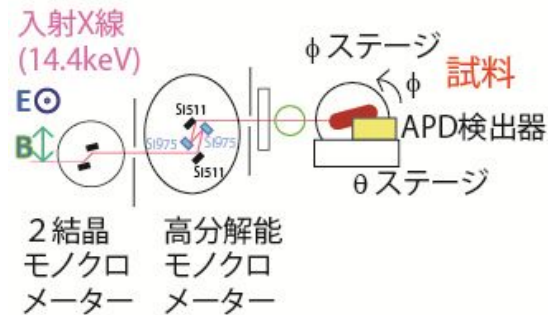
3. 研究の方法

実験はSPring-8の核共鳴散乱(BL09XU)ビームラインで実験を行う。実験セットアップを図1に示す。⁵⁷Feを含む結晶試料にパルス状の放射光X線(⁵⁷Feの原子核を励起し、核共鳴散乱を生じさせる14.4 keV)を照射し、試料を回転させながら、高速APD検出器でFe K 蛍光X線6.4 keVの強度変化を測定すればホログラム(蛍光ホログラム・線ホログラム)となる(図2)。つまり、⁵⁷Feを含む結晶試料への入射線の方位を走査して、原子核励起により発生する内部転換電子を起源とする、遅延蛍光X線のみでの2次元強度分布を取得すれば線ホログラムとなる。エネルギーを分離した遅延蛍光X線のみでの取得の際には、(A)観測したい蛍光X線6.4 keVと入射X線の散乱成分14.4 keVを分光器や波高

弁別モジュール等で分離する。さらに、(B)X線照射直後に発生する蛍光X線との時間差の差を利用して、⁵⁷Feの核共鳴励起直後の核の寿命程度に渡って発生する遅延蛍光X線、すなわち核共鳴散乱X線の成分のみを抽出して測定する。時間枠のタイミングはSPring-8のRF信号から作成して利用する。

この新たな3D原子配列測定法の樹立の為に、高速・高精度・高検出効率の測定系を整備し、解析手法も確立する必要がある。研究代表者は既に⁵⁷Feを使用して予備実験を行ったが、現有のシステムでは検出効率が低く、高精度のデータが取得できなかった。そこで、本研究では新たな高速・高検出効率・高精度の基本測定システムの構築を行い、さらには測定・解析手法の完成を目指すこととする。本測定法の最初の研究対象は、核共鳴散乱に典型的な核種である⁵⁷Feの単結晶-Fe₂O₃(ヘマタイト)とする。

[横から見たセットアップ]



[上から見たセットアップ]

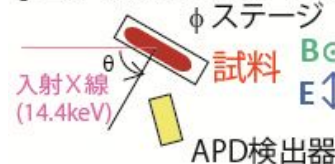


図1. SPring-8 BL09XUでの光学系セットアップ。

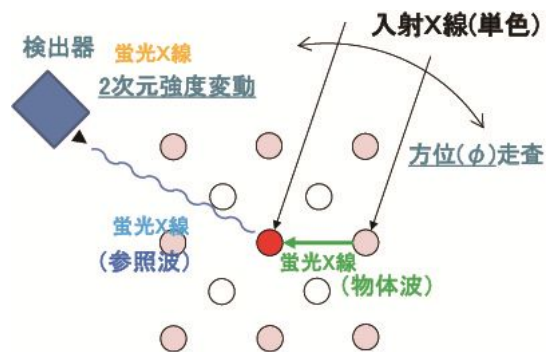


図2. X線の波動性を利用するホログラムの原理。

4. 研究成果

^{57}Fe を含むヘマタイト ($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$) 結晶試料にパルス状の放射光 X 線を照射し、試料を回転させながら、高速 APD 検出器で X 線の強度変化を測定し、(1)・(2)の 2 手法で測定、図 3)、ホログラムを得た。

(1) トロイダル型グラファイト分光結晶を使う方法: Fe 用のトロイダルグラファイト分光結晶を使って、X 線のエネルギー分析を行った。鉄の蛍光 X 線を 1 個の APD 検出器に選択的に集光させて測定する。広い立体角を有する分光素子自体の制作が難しいが、14.4 keV の散乱 X 線は APD 検出器に入らないというメリットがある。

(2) APD を多素子化・複数素子化する方法: APD を試料に近接配置して立体角を大きくできるメリットがある。その一方で、散乱 X 線も APD に入る為、検出信号のエネルギー分解が重要になる。そこで APD の検出信号をディスクリミネータ モジュールを通して、ディスクリミネータ の下限 (LLD) と上限 (ULD) を利用してエネルギー弁別をする。LLD と ULD の差が信号強度である。

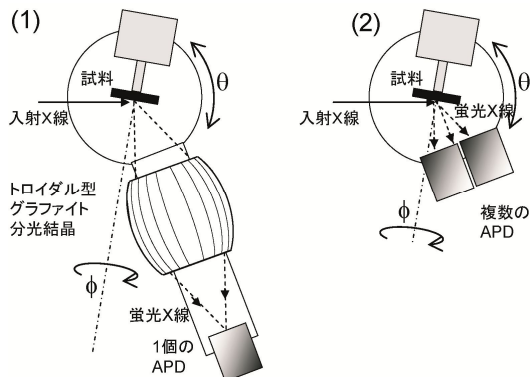


図 3. 2 種類の実験セットアップ。

これらの測定の結果、6.4 keV の蛍光 X 線ホログラム (結晶情報取得可: コッセル線が見えており、3 回対称も見えているので正しいホログラムと判断できる) とは別のパターンを持つデータ、すなわち、14.4 keV の線ホログラムの情報の中に含んでいるデータの取得ができた可能性が高いことがわかった。つまり、この線ホログラムデータには、ホログラム振動よりも大きな、ホログラムとは別起源と考えられる大きな 4 回対称のモジュレーション「4 成分」が含まれていた。測定系の非対称性などを除くために数回に渡って実験セットアップを変えて測定したが、このモジュレーションは必ず再現した。このモジュレーションには物理的な発現機構が存在していると考えられる。なお、この線ホログラムは、メスバウアー線源を用いて測定した Korecki らの結果とは大きく異な

っていたが、この取得した線ホログラムの情報の中に含んでいる我々のデータは、統計が少ないものの解析することができると考えている。

そこで、線ホログラム抽出の為には、この 4 モジュレーションをその物理素過程も考慮して取り除く必要がある。現在はこのモジュレーションの元の物理素過程に関してさらに詳細に検討を行っている。この 4 成分は、放射光特有の光特性、入射 X 線の高いエネルギー分解能 ($\sim \text{meV}$) や偏光特性に起因すると考えても、また試料の結晶対称性 (3 回対称) に起因すると考えても説明ができない。M1 遷移でも説明できない。また、核共鳴散乱の厚み効果と放射光の偏光特性で考えても、観測されたモジュレーションの 4 成分は説明できない可能性がある。

核共鳴散乱の厚み効果の実験的検証として、圧延して結晶面をある程度揃えた ^{57}Fe 薄フォイルやナチュラル鉄の鉄結晶での追試を行いつつあるが、4 成分は検出できておらずで、4 成分の物理素過程に関してはまだ結論は出ていない。現在も引き続き、この研究を進めている。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 0 件)

〔学会発表〕(計 2 件)

岡田 京子、松下 智裕、川瀬 守弘、櫻井 吉晴、八方 直久、細川 伸也、林 好一、 “放射光・核共鳴散乱での線ホログラム測定”、物理学会第 60 回年次大会、2014 年 3 月 27 日～30 日、東海大学湘南キャンパス(神奈川県・平塚市)

K. OKADA, T. Matsushita, Y. Yoda, T. Ohata, M. Kawase, N. Happo, S. Hosokawa, K. Hayashi, Y. Sakurai, “ γ -ray Holography by using Synchrotron Nuclear Resonant Scattering”、国際ワークショップ 3D-AINAS 2012、2012 年 8 月 6 日～8 月 8 日、東大物性研(千葉県・柏市)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

出願年月日：
国内外の別：

取得状況（計 0 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岡田 京子 (OKADA, Kyoko)
(公財)高輝度光科学研究センター・利用研
究促進部門・研究員

研究者番号：70399616

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：