

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 26 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26600143

研究課題名(和文) 軌道角運動量可変マイクロX線渦ビームの形成と磁気イメージング・吸収分光への応用

研究課題名(英文) Production of micro X-ray vortex beam with variable orbital angular momentum and its application to magnetic imaging and absorption spectroscopy

研究代表者

高橋 幸生 (Takahashi, Yukio)

大阪大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：00415217

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：ブラッグ回折を利用したX線タイコグラフィーを用いてシリコン単結晶中の転位歪み場を数十ナノメートルの空間分解能で可視化できることを実証した。また、可視化した位相分布を参照し、位相特異点に集束したコヒーレントX線を照射することで回折波にマイクロX線渦ビームが形成され、その軌道角運動量を自在に制御できることを見出した。X線渦ビームは、3d遷移金属の双極子遷移と四重極遷移を識別するX線吸収分光など様々な応用の可能性を秘めている。

研究成果の概要(英文)：We experimentally visualized nanoscale dislocation strain fields in a thick silicon single crystal by Bragg X-ray ptychography. We found that the X-ray microbeam carrying orbital angular momentum is selectively produced by coherent Bragg diffraction from dislocation singularities in crystals. This work not only provides us with a tool for characterizing dislocation strain fields buried within extended crystals but also opens up new scientific opportunities in spectroscopy.

研究分野：X線光学

キーワード：量子ビーム科学

### 1. 研究開始当初の背景

転位は、その特異な構造から光学素子としても重要な役割を担う。光線は、一般に進行方向と垂直に一樣な波面を持つ平面波として記述される。ところが、光を転位と相互作用させることで波面をらせん状にねじることができる。この時、光軸上で波は打ち消し合い、中心強度がゼロの特異点を形成する。この「らせん状の波面」、「中心強度がゼロ」という特徴を有する光を特に光渦と呼ぶ。光渦の最大の特徴は軌道角運動量を伝播することにある。光の角運動量は、光子の自転運動に相当するスピン角運動量と公転運動に相当する軌道角運動量の2つの成分で記述される。通常、光子はスピン角運動量のみを有するが、光渦は、スピン角運動量と軌道角運動量を有する。1992年にAllenらが可視光レーザーを用いて光渦ビームの生成法を開発したのを皮切りに、軌道角運動量を活用する研究が始まった。近年、放射光X線、電子線、自由電子レーザーでも渦ビームの形成が報告され、その研究は量子ビーム全体に広がりを見せている。

### 2. 研究の目的

コヒーレントX線回折イメージングの一手法であるX線タイコグラフィを用いてシリコン単結晶薄膜の転位歪み場を可視化する。そして、転位の位相特異点にコヒーレントX線を照射することで回折X線に渦ビームの形成させることが本研究の目的である。

### 3. 研究の方法

試料には、Norcada社より購入したシリコン単結晶薄膜を使用した。この薄膜は、SOI(Silicon on Insulator)ウエハーをエッチングすることによって作製されており、厚さ1 $\mu$ mのSi薄膜が厚さ200 $\mu$ mのSi窓によって支持されている。また、薄膜表面は(100)面となっている。測定は、大型放射光施設SPring-8のBL29XULにて行った。図1に測定の概念図を示す。11.8keVに単色化した放射光X線をKirkpatrick-Baez(KB)ミラーによって、600nmスポットに集光した。集光点のX線フラックスは $\sim 3 \times 10^7$ 光子/秒であった。Siの(220)面に対して対称ラウエ配置となるように、集

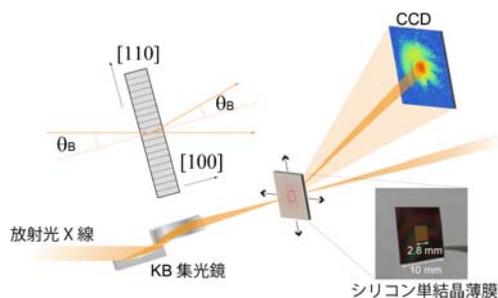


図1 シリコン単結晶薄膜のブラッグX線タイコグラフィ測定の概念図。

光点にシリコン単結晶薄膜を配置した。ブラッグ角は15.88°であった。試料を垂直方向に520nmステップ、水平方向に500nmステップで20 $\times$ 20点を二次元的に走査し、各点において(220)面からのコヒーレントブラッグ回折強度パターンを取得した。各点におけるX線の照射時間は10.3秒であった。

### 4. 研究成果

#### (1) シリコン単結晶薄膜のコヒーレントX線回折強度パターンの観測

図2(a)に得られた400枚の回折パターンを示す。ここで、X線強度は対数スケールで表示されている。図2(a)の中で特徴的なパターンを拡大したものを図2(b)に示す。図2(b)の各パターンの右下にはブラッグスポットを含む強度の大きな領域のみを線形スケールで表示している。パターンAは、結晶の完全性の高い領域からの回折パターンで、上下に伸びているストリークは集光光学系に由来している。パターンBおよびパターンCは転位を含んだ領域からの回折パターンである。パターンBに類似したパターンが、他の箇所でも多数見られた。パターンBではブラッグスポットが二つに分裂しており、これは転位による破壊的な干渉の結果である。また、ブラッグスポット周辺の斑点模様は転位による格子歪みに由来している。パターンCではブラッグスポットが中心強度を持たないホロー構造をしている。これは、渦ビームの特徴を表しており、転位芯のような位相特異点にX線を照射した際に観測されることが後述べる波動光学計算の結果から明らかとなった。

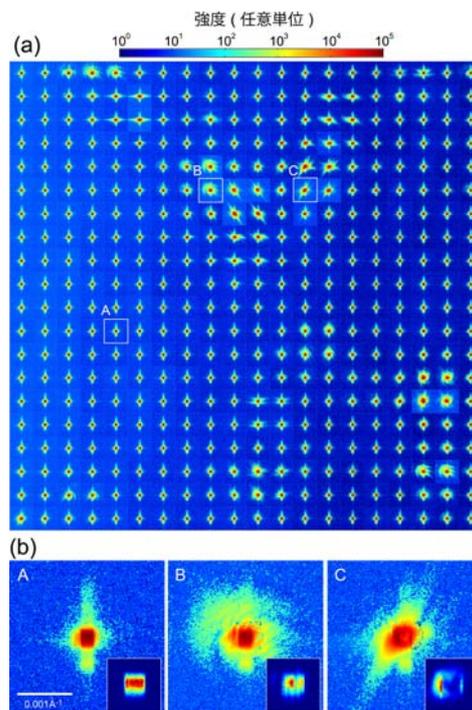


図2 (a)シリコン単結晶薄膜の(220)面からのコヒーレントブラッグ回折パターン。

## (2) シリコン単結晶薄膜の再構成

回折パターンに位相回復アルゴリズムを実行することによって再構成された試料像を図 3(a)に示す。視野は $\sim 10 \times 10 \mu\text{m}^2$ であり、ピクセル分解能は  $35.4\text{nm}$  である。再構成像中に見られる周期的なパターンは試料走査の並進対称性由来するアーティファクトである。再構成像には、このアーティファクトとは別に転位歪み場由来する明瞭なコントラストが見られ、転位のある箇所では振幅が小さく、位相変化が急峻になっている。図 3(a)で四角で囲った領域の拡大像を図 3(b)に示す。4つの位相特異点があり、それらは振幅の小さい位置と一致している。これらの結果より、すべり面である(111)面内に二つの微小転位ループが存在し、(110)面がそれらを横切っていると考えられる。図 3(b)から転位ループの直径は  $1\sim 2\mu\text{m}$ 、ループの間隔は  $\sim 200\text{nm}$  と見積もられる。

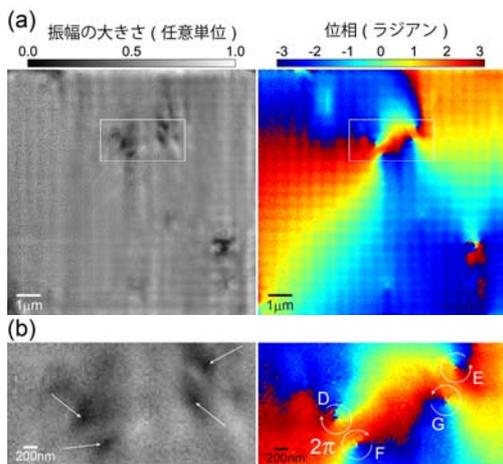


図 3 (a) X 線タイコグラフィーで再構成されたシリコン単結晶薄膜の試料関数の(左)振幅の大きさと(右)位相。(b)(a)の中で四角で囲まれた領域の拡大像。

## (3) 入射 X 線ならびに回折 X 線の波動場の再構成

図 4(a)に再構成された照射 X 線の波動場を示す。矩形開口のフラウンホーファー回折図形に類似しており、これは矩形開口アパーチャを備えた KB 集光光学系によって集束された X 線の波動場の一般的な特徴である。水平方向に比べて垂直方向に延びているフリッジの周期が短いのは、ブラッグ条件から僅かに外れた条件で測定を行ったからであると考えられる。X 線タイコグラフィーで高分解能化を達成するには、試料上の正確な位置に X 線を照射する必要がある。位相回復計算によって、照射 X 線の波動場を再構成できていることは、測定中に光学系が安定していたことによる像再生の信頼性の高さを表している。

X 線タイコグラフィーで試料背面の波動場が決定されると、フーリエ光学に基づく伝播

計算により、試料背面から任意の距離だけ離れた位置での X 線の波動場を導出することができる。回折パターンに渦ビームの特徴を有するパターンが含まれていたことを受けて、図 4(a)の入射 X 線の波動場の中心が図 3(b)の位相特異点 D および E と重なるように配置した場合に観測されるブラッグ回折波の波動場を計算した。その結果、試料背面から  $10\text{mm}$  離れた位置では、図 4(b)のような X 線波動場が得られた。この波動場は中心強度を持たず、位相分布が渦状となっていることから、光渦であると言える。また、その渦の回転方向は、シリコン中の位相特異点周りの位相変化の向きと一致している。すなわち、転位を含むシリコン単結晶薄膜が X 線渦形成のための光学素子として機能していると言える。

量子力学の中で、軌道角運動量は換算プランク定数  $\hbar$  の整数倍  $l\hbar$  で与えられる。 $l$  は方位角モードを表し、 $l$  の正負は捻じれ方向、 $l$  の絶対値は波長あたりの捻れ数に対応している。図 4(b)の X 線渦はそれぞれ  $l=+1$  と  $l=-1$  の方位角モードに対応しており、位相特異点を選択することで方位角モードの正負の切り替えが可能であると言える。これまで、刃状転位を模倣したマスクを用いた電子線渦ビーム形成において、回折次数に対応した複数の方位角モードの渦ビーム形成が報告されている。本研究では、(220)面からの回折で  $l=\pm 1$  の方位角モードの X 線渦ビームが形成されており、ブラッグ条件を変更し(440)面からの回折を利用することで、 $l=\pm 2$  の方位角モードの渦ビームが形成される可能性がある。これまで、X 線渦ビームの形成に関して、スパイラル型ゾンプレートを用いた渦ビームの形成が報告されている。この場合、同一波長で方位角モードを変更するには、ゾンプレートを変更する必要があった。結晶転位を利用する本手法は、先に述べた方位角

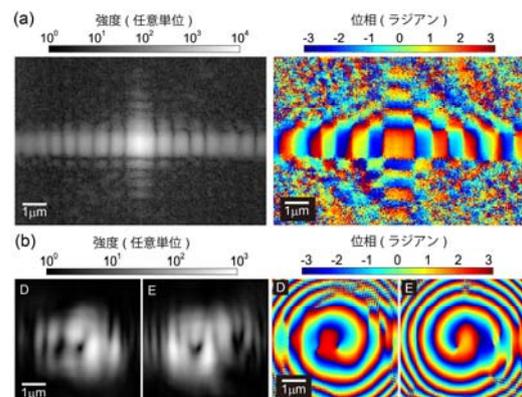


図 4 (a) X 線タイコグラフィーで再構成された X 線照射関数の強度と位相の横断面。(b)図 3(b)の D および E の位相特異点に X 線を照射した際、試料背面から  $10\text{mm}$  下流の位置で観測される回折波の強度と位相の横断面。

モードの正負の可変性に加えて、ブラッグ条件を変更することで方位角モードの次数を制御できる可能性があり、従来の方法と比べて、軌道角運動量の可変性において優れていると言える。また、シリコンに照射する X 線のスポット径や伝播距離を変更することで、任意のサイズの渦ビームを形成することも重要な特長である。

今後、X 線渦ビーム形成法の確立と応用の開拓が期待される。近年、軌道角運動量を有する X 線の吸収は、電子の遷移過程が双極子遷移と異なる選択則となり、3d 遷移金属の場合、1s→3d の四重極遷移が選択的に励起されるという理論計算が報告された。しかしながら、X 線渦ビームを用いてこれを観測するには、X 線を数ナノメートル程度に収束する必要があることが分かってきた。今後、X 線集光技術が更に進展することで、X 線渦ビームを用いた X 線吸収分光実験への展開が期待される。

#### 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 1 件)

1. 高橋幸生, “X 線タイコグラフィによる転位ひずみ場の可視化と X 線渦ビームの形成,”  
応用物理 83, 366-370 (2014).

[学会発表] (計 0 件)

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ:

<http://www-up.prec.eng.osaka-u.ac.jp/takahashi>

#### 6. 研究組織

(1) 研究代表者

高橋 幸生 (TAKAHASHI YUKIO)

大阪大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号: 00415217

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし