

蛍光 X 線ホログラフィーを用いた
磁気散乱中性子ホログラフィー標準試料 $\text{Fe}_{0.08}\text{Co}_{0.92}$ の局所構造解析
Local Structural Analysis of Standard Material $\text{Fe}_{0.08}\text{Co}_{0.92}$
for Neutron Magnetic Scattering Holography
by Using X-ray Fluorescence Holography

中田 肇^{1,*}, 福井悠斗¹, 菅野智哉², Keiko WIDYANISA²,
小林洋大², 富松優花², 木村耕治¹, 大山研司², 林好一¹

¹名古屋工業大学大学院工学研究科,

〒466-8555 愛知県名古屋市昭和区御器所町

²茨城大学大学院理工学研究科,

〒319-1106 茨城県那珂郡東海村白方 162-1

Hajime NAKADA^{1,*}, Yuto FUKUI¹, Tomoya KANNO², Keiko WIDYANISA²,
Yohdai KOBAYASHI², Yuka TOMIMATSU², Koji KIMURA¹, Kenji OHYAMA²,
Kouichi HAYASHI¹

¹Department of Physical Science and Engineering, Faculty of Engineering, Nagoya Institute of Technology, Gokiso, Showa, Nagoya, Aichi 466-8555

²Department of Science and Engineering, Ibaraki University, 162-1 Shirakata, Nakagun, Tokaimura, Ibaraki

1 はじめに

現在、平均及び長距離秩序の磁気構造を観測する手法は確立されているのに対し、ドーパント周辺の局所磁気構造を観測する手法は確立されていない。我々は、磁気散乱中性子ホログラフィーを開発することにより、局所磁気構造を観測する新手法の確立を試みている[1,2]。上記の試みを行う上で、標準試料として $\text{Fe}_{0.08}\text{Co}_{0.92}$ 単結晶を用いている[3]。 $\text{Fe}_{0.08}\text{Co}_{0.92}$ 単結晶は、古典的な中性子偏極子であるため、偏極中性子測定により強いスピン方向依存性が期待できる。 Fe と Co の中性子吸収断面積が、 2.56barn 、 38.18barn であることから、 Co からの強い γ 線を測定し解析を進めている。

磁気散乱中性子ホログラフィーの確立を行う上で現在問題となっているのが、中性子ホログラフィー[4]での測定において $\text{Fe}_{0.08}\text{Co}_{0.92}$ 単結晶の原子像が見えないことである。原子像の観測ができなければ、原子像のホログラムより強度の低い磁気ホログラムの観測は不可能である。本研究の目的として、蛍光 X 線ホログラフィーを用いて Fe 周辺の局所構造と Co 局所周辺の構造を測定し、 $\text{Fe}_{0.08}\text{Co}_{0.92}$ 合金の局所構造の評価を行い、上記問題の調査及び解決を行う。

蛍光 X 線ホログラフィー(XFH)は、特定元素まわりの 3 次元原子配列を可視化できる手法である。他の構造解析手法と比較して、モデルフリーで 3 次元構造が得られる、元素選択性がある、XAFS よりも遠方の構造情報が得られる、といったメリットがあ

る。そこで、本研究では、XFH を $\text{Fe}_{0.08}\text{Co}_{0.92}$ に適用し、 Fe まわりの局所構造と Co まわりの局所構造の違いに着目した。

2 実験

測定試料として、垂直ブリッジマン法(VB法)で育成した $\text{Fe}_{0.08}\text{Co}_{0.92}$ 単結晶を用いた。XFH 測定は、BL6C で実施した。専用のゴニオメータに試料を取り付け、X線照射によって発生する Fe の $K\alpha$ 線と Co の $K\beta$ 線を、トロイダル型の結晶によって分光・集光し、アバランシェフォトダイオード検出器によってホログラムを記録した。冷却は窒素吹き付け式のクライオクーラーによって行い、それぞれ Fe と Co で 100K 、 300K の 2 点でホログラムを測定した。各温度において、 $13.0 \sim 17.5\text{keV}$ の範囲で入射エネルギーを 0.5keV ステップで変化させ 10 枚のホログラムを記録した。ホログラム 1 枚当たり、3 時間の測

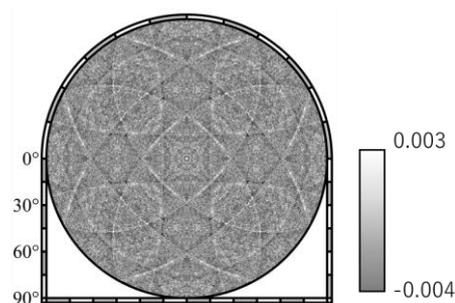


図1 温度300K 入射エネルギー13.5keVで測定した $\text{Fe}_{0.08}\text{Co}_{0.92}$ のホログラム($\text{Fe}K\alpha$)。

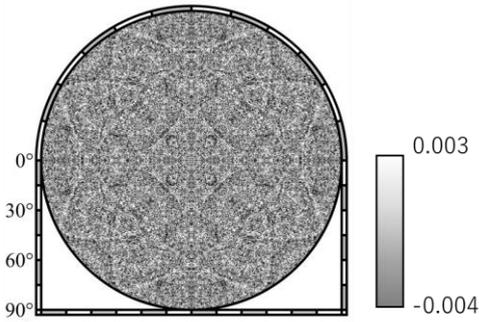


図2 温度300K 入射エネルギー13.5keVで測定した $\text{Fe}_{0.08}\text{Co}_{0.92}$ のホログラム($\text{CoK}\beta$)。

定が必要なため、すべての測定に、3 (hours) × 10 (energies) × 2 (temperatures) × 2 (emitter atoms) = 120 時間を要した。

3 結果および考察

図 1,2 に、温度 300 K、入射 X 線エネルギー13.5 keV で取得したホログラムを示す。 $\text{FeK}\alpha$ 線及び $\text{CoK}\beta$ 線で測定したホログラムにおいて、ともに明瞭な定在波線が観測されたことから、質の良いデータを得られたことが確認できる。ただし、 $\text{CoK}\beta$ のデータについて、ブラッグピークが多く混入していた。現在その除去作業を行っており Co のホログラムについては原子像再生に至っていない。 $\text{FeK}\alpha$ 線のホログラムから、原子像再生を行った結果を議論する。

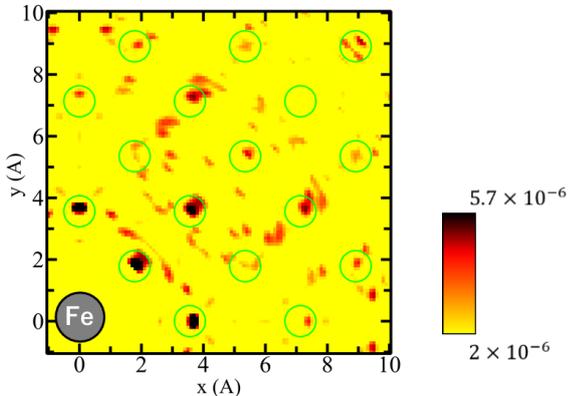


図 3(a) 300K における Fe 近傍の原子像 $z=0 \text{ \AA}$ 面

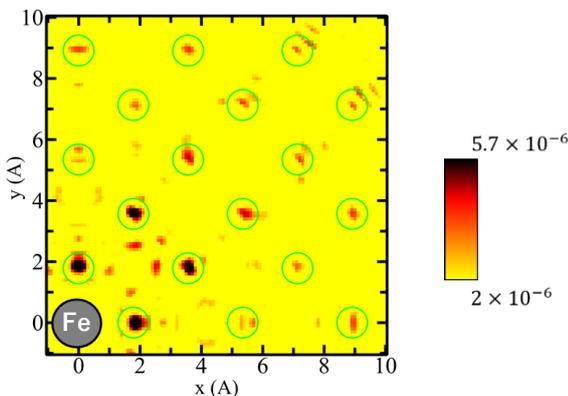


図 3(b) 300K における Fe 近傍の原子像 $z=1.84 \text{ \AA}$ 面

図 3 に 300K における Fe まわりの原子像を示す。Fe は Co の原子位置にランダムに置換するものと考えられている。 $\text{Fe}_{0.08}\text{Co}_{0.92}$ の fcc 結晶構造から予測される Co および Fe 原子の位置を丸で示した。丸の位置に明瞭な原子像が観測され、妥当な結果が得られたことが確認できる。図 3(a)は、Fe と同じ面内の原子像、図 3(b)は Fe の一つ上の面($c/2$ 面)の原子像である。

図 3(a),(b)の両方の原子像からわかるように、第一近接から第四近接原子までの明瞭な原子像が得られている。また、図 3(b)について、格子定数 3.543 \AA を考慮するとその半分の 1.77 \AA の高さに原子像が現れると想定されるが、そこから 0.07 \AA ずれた 1.84 \AA の面において、もっとも強い強度が観測された。以上より、 $\text{Fe}_{0.08}\text{Co}_{0.92}$ 結晶において、Fe 近傍の構造は、 $z=0 \text{ \AA}$ 面に関しては、ほぼ理想位置に原子が存在しており、 $c/2$ 面の原子に関しては、理想位置からわずかにずれている可能性がある。このずれが有意な結果であるかについて現在検討している。本結果は、回折実験や PDF 解析に基づいて行われる、モデル構造を用いた議論よりも、直接的な観測結果であり、従来考えられていた構造との違いについて、今後考察を進める予定である。

現在、原子像の強度や形状から、Fe 近傍の歪の影響を定量的に評価することを検討している。また、 $\text{CoK}\beta$ 線のホログラムの補正を進め、両者の定量的な比較を行う予定である。

その後、中性子ホログラフィーで得られている Co まわりの原子像と比較し、課題である原子像が見えない点についての原因などの検討を進めていきたい。

4 まとめ

本研究では、古典的な中性子偏極子で、磁気散乱中性子ホログラフィー用の標準試料である $\text{Fe}_{0.08}\text{Co}_{0.92}$ の XFH 測定を実施し、Fe まわりの結晶構造について議論した。Fe 近傍の原子はほぼ理想位置に存在していることがわかった。この結果は、従来手法とは異なり、モデルフリーの一次情報で観測されたものであり、 $\text{Fe}_{0.08}\text{Co}_{0.92}$ の結晶構造の検出に XFH 法が有効であることが示され、緒言の問題を解決に導くであろう。今後は、定量的な解析を進めていく予定である。

参考文献

- [1] Alex Szakál *et al.*, Appl. Phys. **117**, 17E132 (2015)
- [2] A. Szakál *et al* 2018 EPL **122** 56001
- [3] Neutron Data Booklet A.Dianoux *et al.*,(2003)
- [4] K.Hayashi *et al.*, Sci. Adv. 2017.3 e1700294