

# 光電子ホログラフィーと蛍光 X 線ホログラフィーによる ドーパントの原子構造の可視化

松下 智裕

奈良先端科学技術大学院大学・高輝度光科学研究センター

近年、原子分解能ホログラフィー（光電子ホログラフィー、蛍光 X 線ホログラフィー、中性子ホログラフィー）によって、結晶中のドーパントの立体原子配列が解けるようになってきた。現代の科学技術においてドーピングによる物性制御は非常に重要な技術である。ドーピング時の温度などの条件によってドーパントの原子配列が変化し、物性も変わってしまうことが知られているが、今まではドーパントの原子配列を立体的に観測する方法は存在せず、XAFS や電子顕微鏡などで推定するのみであった。原子分解能ホログラフィーは特定の元素の周囲の立体構造を直接可視化できる。

光電子ホログラフィーの測定原理は単純である。ドーパントの内殻光電子を励起すると、この電子波は周囲の原子で散乱され、自然に直接波と散乱波が干渉する条件になる。この干渉縞が光電子放出角度分布に現れ、これが光電子ホログラムになる。光電子の放出角度分布は角度分解光電子分光 ARPES による価電子帯の研究によく利用されるが、これを内殻光電子の測定に切り替えるだけで、光電子ホログラムの測定になる。ただし、広い立体角に渡って二次元的に測定する必要がある為、市販の電子アナライザーを利用する場合にはサンプルの角度を 2 軸走査しつつ、測定する必要がある。この測定法でシリコン結晶中の As ドーパント[1] やダイヤモンド中の P ドーパント[2]の構造決定に成功した。また、近年、高分解能 ( $E/dE=1100$ )で広い立体角( $\pm 50^\circ$ )をカバーできる阻止電位型電子アナライザーを開発した。測定の高精度化と大幅な時間短縮が見込める[3]。

一方の蛍光 X 線ホログラフィーはインバースモードと呼ばれる方法で主に測定する。入射 X 線の原子による散乱と干渉を利用することで、入射方位を走査しつつ蛍光 X 線を測定すると原子分解能ホログラムが得られる。この測定法は放射光と相性が良く、入射 X 線のエネルギーも走査することで多重エネルギーホログラムが得られ、ここから高精度な三次元原子配列が得られる。これにより Bi<sub>2</sub>Te<sub>3</sub>中の Mn ドーパント[4]など多くのドーパントなどの原子配列を解くことに成功している。現在も微小結晶対応など多くの技術開発が進んでいる。

また、原子分解能ホログラムを解析する理論として機械学習のスパースモデリング(L1 正則化)を利用した理論を開発し、従来よりも原子像がよく再生できるようになった[5-6]。原子分解能ホログラム解析のためのデータ処理のアルゴリズムはソフトウェアパッケージ 3D-AIR-IMAGE にまとめ、インターネットで公開している。

[1] K. Tsutsui, T. Matsushita, et al., *Nano Lett.*, 17, 7533 (2017).

[2] T. Yokoya, T. Matsushita, et al., *Nano Lett.*, 19, 5915 (2019).

[3] T. Muro, T. Matsushita, et al., *Rev. Sci. Instrum.*, 88, 123106 (2017).

[4] S. Hosokawa, T. Matsushita, et al., *Phys. Rev. B*, 96, 214207 (2017).

[5] T. Matsushita, *Phys. Status Solidi B*, 255, 1800091 (2018).

[6] T. Matsushita, et al., *J. Phys. Soc. Jpn.*, 87, 061002 (2018).