



2D-XAFS 測定結果の解析手法とスペクトル歪検討

Lin Yunli, 鈴木凌輔, 久能俊介, 箱木響, 重松航太, 安藤大生, 西村蒼生, 田渕雅夫
名古屋大学

キーワード：XAFS 測定の基礎、2D XAFS 測定、データ解析

1. 背景

通常 2D-XAFS 測定の対象は「不均質」であるが(均質なら 2D 測定する意味がない)、「不均質」な試料の XAFS 測定を行うと程度の差はあれスペクトルが歪むことが懸念される。一方で、2D-XAFS 測定で得られる数万から数百万のスペクトルの一つ一つを人間が検討し歪の有無を確認することは不可能である。我々はこの問題に対する対策として複数の方向で検討を進めている。一つは 2D XAFS 測定を行ったときに得られる大量のデータについて歪みの有無を自動的に判断する手法の開発で、もう一つの重要な技術として、歪を許容し、歪んだスペクトルから正しい結果を得る方法の開発を目指している。ここでは後者の課題について検討を行った結果を報告する。

2. 実験内容

検討用の模擬試料として、Co 箔と BN 希釈の CoO、Co₃O₄ ペレットを重ねたものを測定した。ペレット試料の不均質による歪と、三試料が重なって吸光度が極端に大きくなった部分で発生する(透過光が弱いときの検出器の非線形性や 3 次光で発生する)歪みが予想される。2D-XAFS 測定は平面 M1 ミラーと X 線カメラを用いて行った。Co K 吸収端(7.7keV)は 3 次光が、BL11S2 通常配置の M0/M1 ミラーのカットオフを越えるので通常高次光除去ミラー(M2)を入れない。今回も M2 は使用しなかった。



図 1. 透過像の 1 枚(白黒反転)

3. 結果

今回の解析では、1 つのピクセル内を仮想的に複数の領域に分割し、それぞれの領域は組成や厚さの違う状態で構成されていると仮定した。一つのピクセルに照射された光は分割されて個々の領域を通過する。透過光として測定されるのはその合計なので、入射光強度で除して対数をとって得られるのは個々の領域の吸光度の平均などとは違うものになる。

$$I_1 = \sum_{i=1}^N \frac{I_0}{N} \exp -\mu_i t_i \quad \Rightarrow \quad -\log \frac{I_1}{I_0} \neq \frac{1}{N} \sum \mu_i t_i$$

そこで、この式をそのまま使って、測定される I_1/I_0 を再現する μ_i (あるいは組成)や、 t_i を決める方法が必要になる。これまでの試みとして、逆モンテカルロ法を適用する方法である程度の成果が得られることは分かっているが解析に長い時間がかかり 2 次元全面の解析に適用するのは現実的ではない。次の方法として、分割数 N を 10~20 程度に制限し、その状態を表現するパラメータを総当りで変化させてフィッティングするスペクトルを見つける方法を検討したがこれもそのままでは時間がかかる。しかし、フィッティングを行うパラメータの値を篩いにかけて、総当たりを避けることで 2D 測定結果全面の解析を有意な時間(数秒)で終わらせることができるようになった。図 2 は、Co と Co₃O₄ が共存している部分(図 1 の右上)の一部について Co, Co₃O₄ の存在量の解析結果を拡大して示したものである。結果を見ると、Co 箔には稀に穴が見られるもののほぼ均一の厚さなのに対して、Co₃O₄ は全体にムラがあり、粒状に凝集した部分も見られた。これは試料の実際の状態の予想と一致する結果で、解析が正しく行えていることを強く示唆している。

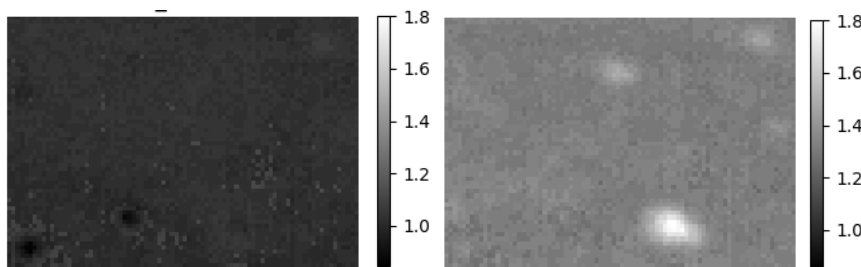


図 2. Co、Co₃O₄ 共存部(図 1 右上)の解析結果(拡大)。Co 箔はほとんど均質で下方やや左寄りに穴(黒い影)がある。Co₃O₄ は全体にムラがあり凝集した粒(白斑)がいくつか見られる。この様な特徴は試料の状態として予想される様子と一致する。