

原子レベル振動分光を利用した同位体分析

Isotope analysis using atomic-scale vibrational spectroscopy

産総研¹, 阪大², 防衛大³, 東北大⁴, 東大⁵ ○千賀 亮典^{1,2}, 萩田 克美³, 宮田 智衆⁴,
王 孝方⁴, 眞弓 皓一⁵, 陣内 浩司⁴, 末永 和知²

AIST¹, Osaka Univ.², NDA³, Tohoku Univ.⁴, Tokyo Univ.⁵ °Ryosuke Senga¹, Katsumi Hagita³,
Tomohiro Miyata⁴, Hsiao-Fang Wang⁵, Koichi Mayumi⁶, Hiroshi Jinnai⁴ and Kazu Suenaga²

E-mail: ryosuke-senga@aist.go.jp

同位体分析技術は、生体や化学反応の追跡、環境調査、鉱物の年代判定など幅広い分野で用いられている。しかしながら、既存の検出技術の空間分解能は数 10～数 100nm 程度であり、単原子や単分子の同位体標識の追跡など、サブナノスケールでの応用はこれまでほとんど例がなかった。本研究では電子エネルギー損失分光 (EELS) による振動吸収測定を応用した、原子レベルでの同位体分析技術の開発を行った。

一般的な電子顕微鏡像は中性子の数ではなく原子の静電ポテンシャルを反映するため、単純なイメージングでの同位体の区別は不可能である。しかしながら、近年電子顕微鏡用のモノクロメータの開発が進み、EELS のエネルギー分解能が向上したことで、材料の格子振動や分子振動を検出することが可能になった。EELS で得られる振動スペクトルは原子の重さを反映するため、理論上は同位体の区別が可能となる。しかしながら、先行研究 [1]では、クーロン相互作用を含む双極子散乱電子を利用してため、空間分解能が数 100nm 程度に制限されるという課題があった。

本研究では、高角に散乱された電子を選択的に分光する暗視野法 (Fig. 1) によって同位体を検出する技術を開発した[2]。この方法は衝突散乱電子を利用することで、高い空間分解能を実現している。また材料の極性に依存しないという利点を持つ。この技術を応用して自然同位体比のグラフェン (¹²C グラフェン) と ¹³C 同位体置換ガスから作ったグラフェン (¹³C グラフェン) を格子振動スペクトルから識別することに成功した。また、グラフェン中の同位体炭素原子が、加熱処理によって自己拡散する様子をサブナノメートルの空間分解能で捉えることに成功した[2]。さらに本手法を応用し、高分子材料中の水素同位体の識別を行った。これまで、重水素でラベルされた有機分子の分布は、中性子散乱などを利用した逆空間から平均的な情報を得ることがほとんどであったが、本手法を用いることで、有機高分子中の炭素と結合した水素と重水素の位置をナノメートルスケールの分解能で直接的に識別することが可能になった[3]。

[1] J. A. Hachtel et al., *Science* **363**, 525 (2019)

[2] R. Senga et al., *Nature* **603**, 68-72 (2022).

[3] <https://doi.org/10.21203/rs.3.rs-3995234/v1>

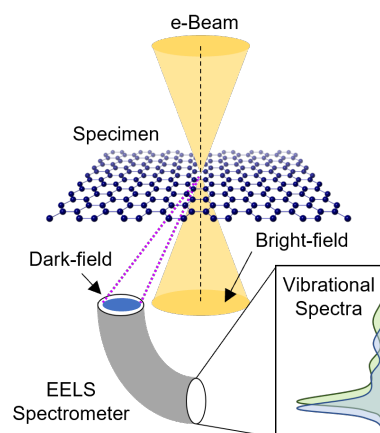


Fig. 1 Schematic of isotope detection using EELS