

X線トポグラフ観察用高分解能 低温試料ステージの試作

(昭和53年5月31日 原稿受付)

物理学教室 近 浦 吉 則

A New Specimen Stage for Low Temperature X-Ray Topography by Yoshinori CHIKAURA

—Abstract—

A specimen stage with a vacuum chamber for low temperature X-ray topography and its associated equipment have been constructed. The system has merits of high geometrical resolution and high stability and small distribution of temperature. It is demonstrated that the system enables us to observe X-ray topographs with high resolution at the temperature of liquid nitrogen.

§1. 緒 論

結晶の一次構造, すなわち単位胞の構造, は回折図形の対称性, 大きさおよび個々の回折斑点の積分強度に反映され, 格子欠陥, 分域等の二次構造は個々の回折斑点内部の強度分布にその情報を与えている。このような二次構造の場所的分布を種々の回折効果を利用して観察する方法がX線トポグラフィ¹⁾と呼ばれ, 現在では比較的完全な単結晶の物性研究の手段として広く応用されるにいたっている²⁾。

しかし従来の研究は, そのほとんどが室温の試料を対象としているために, 研究の範囲がかなり制限されている。もし低温(たとえば液体窒素温度)において試料のトポグラフ観察が出来ればX線トポグラフィの適用範囲は磁性体, 誘電体の分域の問題はもとより結晶塑性や相転移等の研究にも応用することができる。

鈴木ら³⁾はデューワー内の液体窒素をヒーターで気化させて取り出した低温の窒素ガスを発泡スチロールでつづんだ試料に吹付ける方法を提案した。この方法は試料ステージの製作が簡単な点で優れているが, 試料およびその周辺に霜の発生を招きやすい点や, 後述するように試料の温度安定性および分解能の点で改良の余地があるものと考えられている。この他に低温トポグラフ観察があま

り行なわれなかった⁴⁾のは以下で述べる2, 3の困難な点があるためである。

まず第1は分解能の問題である。入射X線が単色化されていない場合には入射線は§2で述べるように普通1[分]程度の角度広がりがあるため, 1[μm]程度の分解能をえるには原子核乾板を試料結晶に10[mm]以内に近づけなければならない。

第2の問題は試料全体の温度分布である。試料全体が一定温度になっていない場合は, 温度の場所的变化による微小な(10^{-5} 程度の)格子歪が生じ動力学的な回折効果により記録された回折像のバックグラウンドが異常に高くなる。その結果, 観察したい現象によるX線の情報がバックグラウンドに埋もれてしまう。試料の温度勾配が極端に大きくなると, 試料の曲がりによって試料全体からの回折が起らなくなる。

第3の問題は試料温度の時間的なゆらぎである。SOR等の強力なX線源を使用する場合⁵⁾を除けば, 普通のX線源(回転対陰極型X線源を含む)では, 数時間~数十時間の露出を必要とする。したがってこの時間内に温度の

* 最近フランスの Meric から低温トポグラフ観察用の試料ステージが市販されたということを知く⁶⁾。またシンクロトロン放射光(SOR)を利用した低温トポグラフ観察は著者ら⁷⁾によってなされた。

変動があってはならない。

第1の問題を解決するために試料ステージを小さくすると、第2および第3の問題が致命的になる。第2、第3の点を重視すると、第1の分解能が犠牲にならざるをえなくなってくる。そこで我々は上記の問題点すべてに対処するため真空槽をもつ低温(液体窒素温度)ステージに試料と同時に乾板を入れてX線の記録をする新しい方式を提案し試作を行なった。この試作結果を報告するのが本論文の主たる目的である。

まず、§2では分解能および光学系についての考察を行ない設計の基本的考えが述べられる。§3では試作された試料ステージの概要と、実際にこれを用いてシリコン結晶を観察した例が紹介される。

§2. 分解能および光学系についての考察

入射X線と回折X線がつくる平面、いわゆる入射面に平行な分解能(水平分解能) d_H は回折に寄与するX線の波長幅 $\Delta\lambda$ によって決まる。回折線の角度分散 $\Delta\theta$ は Bragg の回折の式を全微分することにより、

$$\Delta\theta = \frac{\Delta\lambda}{\lambda} \tan \theta \quad (1)$$

λ : 回折にあずかるX線の平均波長

θ : 波長 λ に対する Bragg 角

故に、試料-乾板の距離を L とすると、

$$d_H = L \cdot \Delta\theta \quad (2)$$

をうる。

たとえば Si 220 反射の場合、特性線 $K\alpha_1$ と $K\alpha_2$ の波長差 $\Delta\lambda$ による水平分解能 d_H は、 $M\alpha$ では

$$\Delta\lambda = 4.3 \times 10^{-3} [\text{\AA}], \quad \theta = 10^\circ 40'$$

$$\Delta\theta = 4.1 \times 10^{-3} [\text{rad}]$$

だから、 L を 10 [mm] にすると、

$$d_H = 11 [\mu\text{m}] \quad (3)$$

となる。

一方 $K\alpha_1$ の波長幅 $\Delta\lambda$ による分散 $\Delta\theta$ および水平分解能 d_H は、上記の実験条件では、

$$\Delta\lambda = 5 \times 10^{-4} [\text{\AA}]$$

だから

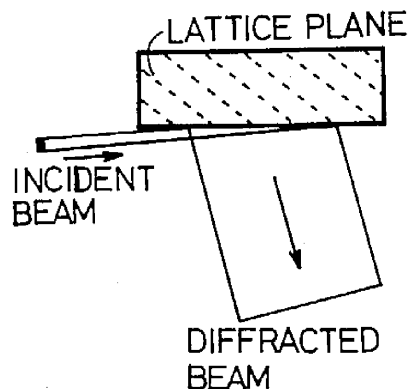
$$\Delta\theta \approx 1 \times 10^{-4} [\text{rad}]$$

$$d_H = 1 [\mu\text{m}] \quad (4)$$

他の反射、他の特性線についても水平分解能は(3)、(4)と同じ程度である。

しかし原子核乾板の乳剤の粒サイズは注意深い現象処理によって、 $0.5 \sim 1 [\mu\text{m}]$ にすることができる。したがって水平分解能を意味ある程度に向上させるためには特性線 $K\alpha_2$ を除かねばならない。 $K\alpha_1$ と $K\alpha_2$ の Bragg 角の差は $3 [\text{\AA}]$ 程度の格子面間隔の反射面に対して数 [分] (Si 220, $M\alpha$ では $3'50''$) であるので、通常入射X線の角度広がり $1 [\text{分}] (\approx 3 \times 10^{-4} [\text{rad}])$ 前後にすれば $K\alpha_2$ の反射は避けられ、水平分解能は式(4)の程度になる。

この平行化によって入射線束の空間幅は、高輝度微小焦点X線源を用いる場合は、 $100 [\mu\text{m}]$ の程度になるから、セクショントポグラフをとることは出来るが、試料全体を観察するには試料と乾板を同時に走査する必要がある。しかしわずかに数 [g] の試料の重さに比較すれば低温試料ステージははるかに重いので、この走査は適当ではない。これに代わって $K\alpha_2$ を除く方式として非平行配置の二結晶法⁶⁾が考えられる。この場合は $K\alpha_1$ のスペクトルの一部だけが試料により回折されるので、(4)で求めた値程度の水平分解能をえるには L の値を更に大きく、 $10 \sim 20 [\text{mm}]$ にすることができる。入射線束の空間幅は、第一結晶の非対称反射を用いることによって10倍程度に広げることができる(図1)。この方式は試料およ



図一 非対称反射によるX線空間巾の拡大

* 現象処理による乳剤の粒粗大化は用いたX線の波長に依存する。短波長のX線程この粗大化は著しい。

び乾板を走査せず低温ステージ内の試料全体のトポグラフィ観察を行なうのに適する。本研究では第一結晶の反射として無転位シリコンの(111)反射を用いた。えられたX線束の空間幅は約2[mm]である。

次に入射面に垂直な方向の分解能(垂直分解能) d_L について考える。 λ 射面に垂直方向のX線焦点の幅を V とすると、格子面の1点 C は、 C を頂点とする半頂角 $(\frac{\pi}{2}-\theta)$ の円錐と入射面の交わる点 P の位置に距離 L に対応する大きさの焦点像を与える。この様子を図2(a)に示す。点 P の位置には乾板がおかれる。したがって、入射面に垂直に C から d_L の距離にある点 C' が乾板の位置 P につくる焦点像が、 C によるそれと重畳すると C と C' との分解が不可能となる。両者が分離できるときの d_L は図2(b)より、

$$d_L = \frac{L}{D+L} \cdot V \quad (5)$$

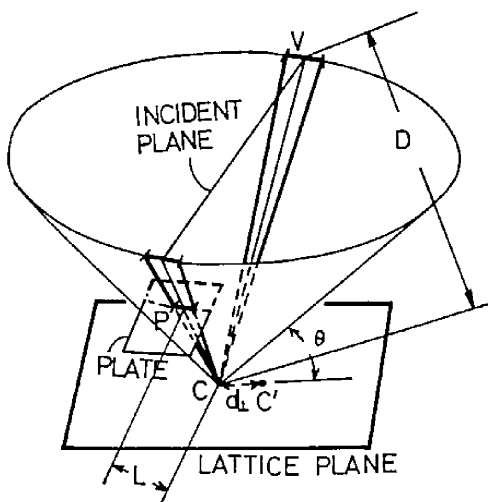
D ; X線焦点から試料までの距離

$D \gg L$ の場合は

$$d_L \approx L \cdot \delta \quad (5')$$

ここで δ は V/D に等しく、試料上の1点が焦点 V に対して張る角を意味する。たとえば、

$$\left. \begin{array}{l} V = 0.1 \text{ [mm]}, D = 500 \text{ [mm]} \\ L = 10 \text{ [mm]} \end{array} \right\} \quad (6)$$



図一 2(a) 垂直分解能の幾何学

とすると、

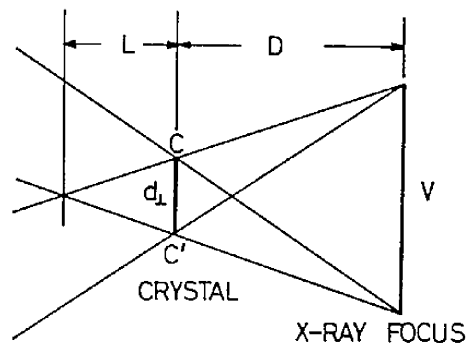
$$\delta = 2 \times 10^{-4} \text{ [rad]}, \quad d_L = 2 \text{ [\mu m]} \quad (7)$$

となる。この条件(6)はモノクロメーターを使わずに1[μm]の水平分解能をうるときの条件を満たしているので、条件(6)は低温試料ステージでセクショントポグラフィをえるのに用いることができる。

試料全体のトポグラフィ像をえるために利用する非平行配置二結晶法では、強度の点から封入X線管球(焦点サイズ $1 \times 10 \text{ [mm}^2\text{]})$ を線源(見かけの焦点サイズ $0.1 \times 10 \text{ [mm}^2\text{]})$ として用いる方がすぐれている。しかしこのとき、(7)と同じ桁の垂直発散角 δ をえるには(5)より試料はX線焦点より数十[m]も離さねばならない。これは空気によるX線の吸収や装置の配置の点から実際的ではない。そこで我々はソーラースリットによって垂直方向の発散をおさえた。

Andersen²⁾と二神³⁾は市販のカミソリ刃を多数重ねてソーラースリットを作り、これを数個適当な間隔にならべて水平方向の平行化を行ない、 $K\alpha_1$ と $K\alpha_2$ の反射を分離する試みを行なった。本研究ではこの組合せソーラースリットを垂直方向の角度発散の抑制に用い、 δ の値として $8.9 \times 10^{-4} \text{ [rad]}$ をえた。

このとき垂直分解能 d_L は、 L が10[mm]の場合、8.9[μm]となる。この方式によって封入管球の線源を使いX線源と試料との間隔は原理的には組合せソーラースリットの長さ程度まで小さくすることができる。したがって光学系は著しくコンパクトになる。



図一 2(b) 垂直分解能とX線焦点サイズの関係

以上の考察からセクショントポグラフを得るときは微小焦点X線源(見かけの焦点サイズ 0.1×0.1 [mm²])を用い、(6)の条件におく。試料全体のトポグラフ観察の場合には封入管球の線源を用い、組合せソーラスリットと非平行配置二結晶法の組合せが適していることが理解される。いずれの場合にも試料-乾板の間隔として10 [mm]程度が許される。

§ 3. 試作結果

写真1に試料全面のトポグラフをえるときの光学系と試料ステージの試作装置全体の写真を示す。

Aは試料を回転させるゴニオメーター、BはAの回転軸上にのせられた液体窒素デューワーと試料支持部、Cは第1結晶とそのゴニオメーター部、Dはソーラスリット、EはDのカミソリ刃の影を消すために垂直方向にDを振動させる部分、Fは真空槽の外におかれたセッティング用の検出器、Gは真空系外から乾板を回転させるた

めのダイヤルである。

真空槽内部を写真2に示す。試料はデューワーBより出た銅の熱伝導体に直接ロウ付により固定され、ゴニオメーターの回転軸上(H)に置かれる。あらかじめ槽内に入れられた乾板IはダイヤルGを用いて真空系外よりまず透過線や回折線の当たらない位置に移動しておき、ゴニオメーターAのダイヤルJで試料の回折条件を調整する。その後ダイヤルGを通して乾板Iを回折線に垂直な位置まで移動し、セッティングが終了する。

この方法によって乾板は試料に、室温のときと同様に、接近させることができ、高い分解能が達成される。また真空槽は試料の大きさにくらべると十分大きいために試料の温度分布やゆらぎは他の方式の試料ステージにくらべると小さくなる。

組合せソーラスリットDの垂直方向の振動が単純であるとカミソリ刃の影が十分消えないので、なるべく複雑な上下振動を行なうように工夫した。振動の最大振幅は2 [mm]、周期は30 [sec]である。



写真1 試料全面のトポグラフを得るときの光学系と低温試料ステージの試作装置全体

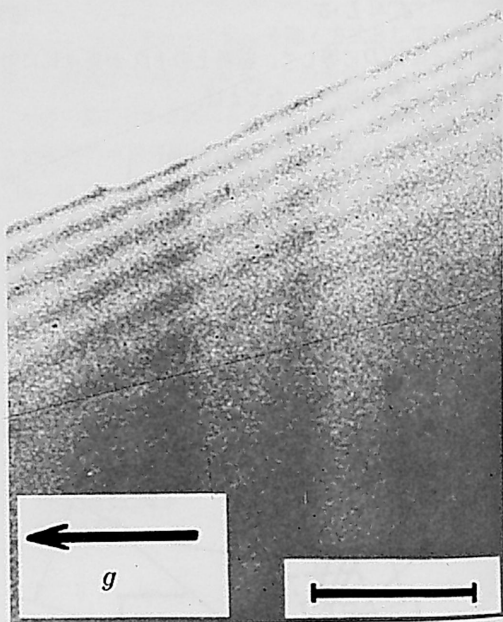


写真3 光学系の質を示す室温でとられたトポグラフ。 $g = [220]$ 、スケールは200 [μm]である。

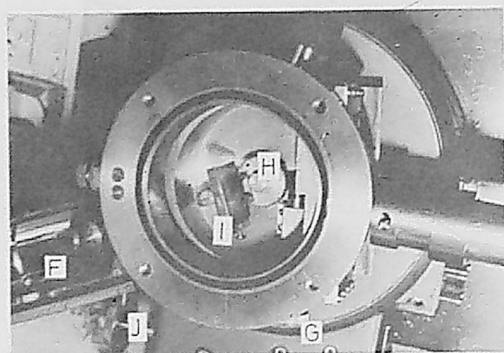


写真2 低温試料ステージの真空槽内部

写真3に室温でとった無転位シリコンの220トポグラフを示す。結晶がくさび状のためいわゆるPendellösung縞⁹⁾が見られる。トポグラフ全体としてソーラスリット

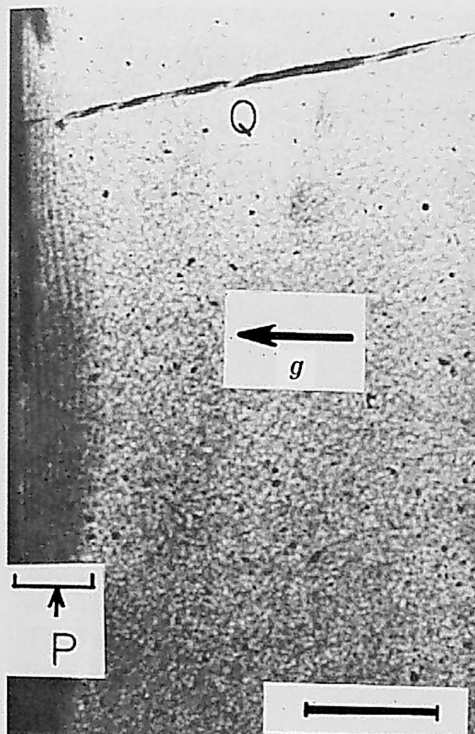


写真4 液体窒素温度におけるトポグラフ。Pの部分には10[μm]以下の間隔のPendellösung縞が解像されている。 $g = [111]$ 、スケールは200[μm]

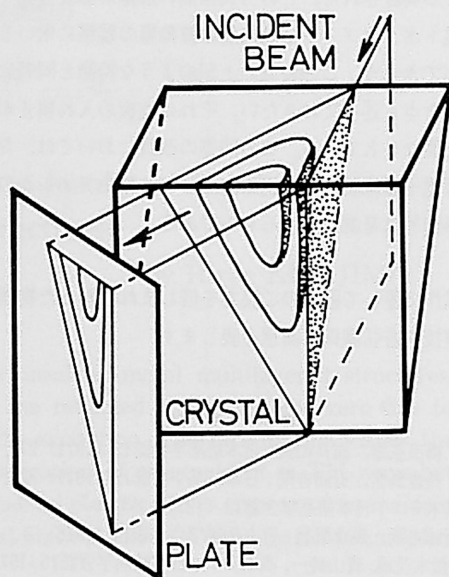


図-3 くさび形結晶内部の波動場とセクショントポグラフ



写真5 液体窒素温度における220セクショントポグラフ。スケールは1[mm]。

の影は生じていない。縦方向にうすく見られる強度のゆらぎは第一結晶の表面が完全には鏡面になっていないからである。

この Pendellösung 縞は得られたトポグラフの絶対分解能を実証するのに利用できる。そこで写真3の試料より厚さの変化の大きいシリコンを液体窒素温度で観察した111トポグラフが写真4である。矢印Pの位置には数[μm]の Pendellösung 縞が明らかに解像されている。室温でのトポグラフには見られなかった点Qのコントラストは急冷によって導入された格子欠陥によるものと思われる。

写真5は高輝度微小焦点X線源(理学電気D-4C)を使ってえた220セクショントポグラフ¹⁰⁾である。これは図3に示すようなくさび形結晶内部の波動場を反映した Pendellösung 縞で、双曲線の形状をもつ¹¹⁾。液体窒素温度においても室温と同程度の分解能でセクショントポグラフが観察されていることがわかる。

§4. 結語

本論文において低温度X線トポグラフの分解能を高めるための問題点を指摘し、それに対処しうる試料ステージと光学系の試作を行なった。

試作装置を用いて液体窒素温度で観察されたトポグラフィは、室温において得られる程度の、高い分解能をもつことが実証された。この方式は高い解像が必要な種々の低温トポグラフィや結晶内部の波動場の観察に用いることができよう。この装置の上記のような特徴と同時に、不利な点も述べておきたい。それは乾板の入れ換えがやや不便なことである。この問題の改良においては、たとえば電子顕微鏡の真空鏡体内部におかれたフィルムの送り機構等は考慮に値するものである。

試作に際して種々のご協力を借しきれなかった物理工
作室技官吉弘満氏に謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) 橋爪弘雄, 高良和武; 日本結晶学会誌13 (1971) 273.
- 2) 長倉繁徳, 近浦吉則; 日本結晶学会誌13 (1971) 320.
高木ミエ; 日本結晶学会誌13 (1971) 311.
近浦吉則, 長倉繁徳; 日本金属学会々報15 (1976) 3.
- 3) 鈴木茂雄, 青山純一, 高木ミエ; 日本結晶学会誌15 (1973) 212.
- 4) B. K. Tanner; 私伝.
- 5) 近浦吉則, B. K. Tanner; 第33回日本物理学会年会講演 (1978, 4).
- 6) たとえば K. Kohra; Lecture Note of International Summer School on X-Ray Dynamical Theory and Topography, August 1975, Limoges, France.
- 7) A.L. Andersen; Rev. Sci. Instr. 36 (1965) 1888.
- 8) S. Oki and K. Futagami; Japan. J. Appl. Phys. 8 (1969) 1574.
- 9) N. Kato and A.R. Lang; Acta Cryst. 12 (1959) 787.
- 10) H. Hattori and N. Kato; J. Phys. Soc. Japan 12 (1966) 1772.
- 11) N. Kato; Acta Cryst. A 25 (1969) 119.