

サブミクロン分解能を有するスペクトロスコピック X線散乱トポグラフィ装置の開発

(平成6年11月29日 原稿受付)

自然科学教室	城	井	英	樹
物質工学科 (大学院生)	船	引	夕	樹
自然科学教室	吉	弘		満
自然科学教室	鈴	木	芳	文
自然科学教室	近	浦	吉	則

Instrumental Development of Highly-resolved X-ray Scattering Topography involving Local Spectroscopy

by Hideki KII
Yuhki FUNABIKI
Mituru YOSIHIRO
Yoshifumi SUZUKI
Yoshinori CHIKAURA

Abstract

Instrumental research for X-ray scattering topography using multichannel (MCA) detectors as a position sensitive detector and an energy dispersive solid state detector is made. The system involves measuring the X-ray spectrum at each local place. Spatial resolution is also improved so as to add a function of X-ray diffraction microscopy. The details of the newly designed apparatus and the applications are described.

1. 緒 論

材料の力学的性質や磁性等の物理学性質とその結晶構造との関連を調べていくと、材料中の構造の場所的分布を像として得たい場合が多い。この場所分布像は、語義からいうと、“トポグラフィ (topograph)” である。従来より結晶評価や結晶不整の研究手段にX線回折トポグラフィが広く使われているが、これには二つの致命的な欠点がある。一つは、観察対象となる結晶は完全性の高い単結晶でなければならない。第二の問題点は、その分解能が高々数 μm である。

我々の研究室では一切の材料制限のない新しいトポグラフィを提案し、一般実用材料 (電磁鋼板、格子不整系半導体エピタキシャル膜等) の観察をおこなってきた。物質からの散乱X線を用いてイメージングすることから散乱トポグラフィと称した。本法の応用としてマルチ

チャンネルアナライザーシステムを使ったスペクトロスコピックX線散乱トポグラフィがある。これはX線強度だけでなく他の物理量 (方位等) を同時にトポグラフィ像として表わす新しい方法である。

この方法を用いると、従来の回折トポグラフィのもつ第二の致命的な点である分解能の問題も、マイクロビームX線を用いることにより解決できる。従来、夢と考えられていた0.2 (μm) の分解能が実現できることになる。

高エネルギー物理学研究所の放射光実験施設でシンクロトロン放射光を使ってX線散乱トポグラフィの実験を行ってきた。試験材料として竹材中のセルロース結晶の分布を観察した。直径が7 (μm) のマイクロビームを用いて2 (μm) の分解能を達成した。X線散乱トポグラフィが、X線回折トポグラフィと同程度の分解能に達していることがわかった。この分解能を0.2 (μm)

にするには1~2(μm)の径をもつマイクロビームを用いることによって可能となる。

本研究は観察対象について制限がなく、サブミクロンの超高分解能をもつ新しいX線散乱トポグラフィの技術を確立することにある。そこで技術を確立する一歩として、シンクロトロン放射光でも使用できる超高分解能の機能をもつ散乱トポグラフィ装置の試作をおこなった。ここでは主に装置試作について述べ、2~3の観察例も示す。

2. システム全体

2.1 装置の全体デザイン

X線散乱トポグラフィを実現する方法にX-Y走査法がある。これはコンピューター制御が容易で操作性にすぐれているので、この方法に基づいてサブミクロンの超高分解能を有するX線散乱トポグラフィ装置の試作を行うことにした。

まず超高分解能の機能を達成する装置を制作するために以下のような装置構成を行った。

- i) X線散乱トポグラフィの基本装置として2(μm)ステップの粗動三次元走査装置をつくる。この上に0.1(μm)ステップの二次元走査装置を載せ、(3+2)次元の走査装置を構成する。
- ii) 走査装置に試料回転装置(ゴニオメーター基台部)を加えて試料ゴニオメーター部を構成する。試料回転装置は、回転角が1(min)の角度分解能をもつ粗動回転機構 ω_1 に、1(sec)の角度分解能をもつ精密回転機構 ω_2 を加える。さらに検出器を回

す回転機構 ω_3 を加えて同一回転軸上で三つの独立した回転機構を直列に配置する。精密回転機構による微小な回転角は、高精度のロータリーエンコーダーで読み取る。

- iii) 入射マイクロビームの制御を装置システムに組み込み、マイクロビームと装置の回転中心を正確にかつ容易に合せることができる摺動基台部をもうける。

以上の構成内容を含む装置をX-Y走査法で組み立てるために、まず装置をシステムブロック化して、

- ①試料ゴニオメーター部
- ②検出器部
- ③入射マイクロビーム制御部
- ④基台摺動部

の四つのブロックに分けて装置をデザインした。そのシステムブロック図を図1に示す。

このブロック図をもとにして、シンクロトロン放射光実験施設で使用しうる超高分解能の機能を有する装置の設計をするために走査装置などの部品、材料等を選び、これを基に装置の設計を行なった。その組み立て図を図2に示す。この装置のサイズは高エネルギー物理学研究所の放射光実験施設の規格に合わせて決めた。

2.2 走査制御

図3はX-Y走査法による本装置の制御システムのブロック図で、検出系にマルチチャンネルアナライザーシステムを組み込んでいる。X-Y走査法とはマイクロビームX線を試料SPに当て、そこから出る散乱線(回折線を含む)の情報をその場所の画素データとし、試料

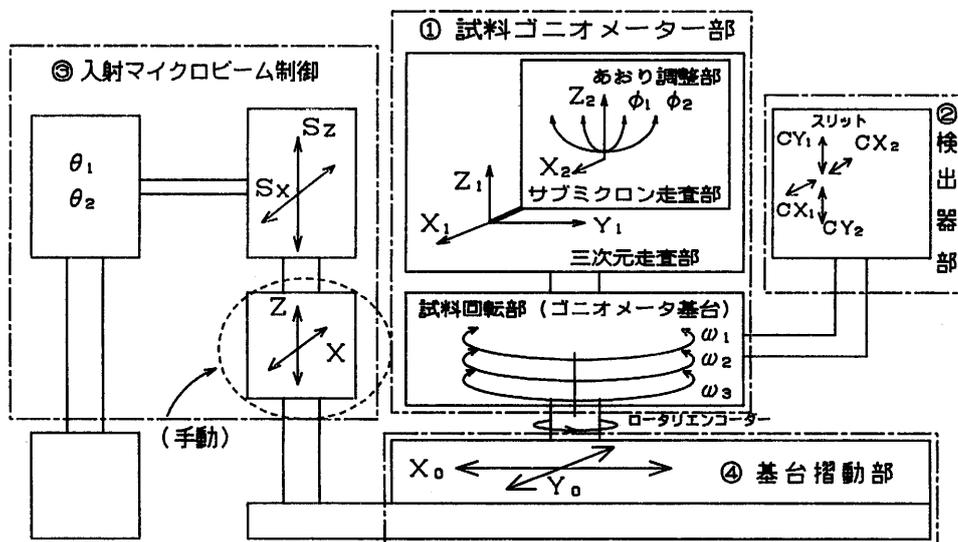


図1 装置のシステムブロック図

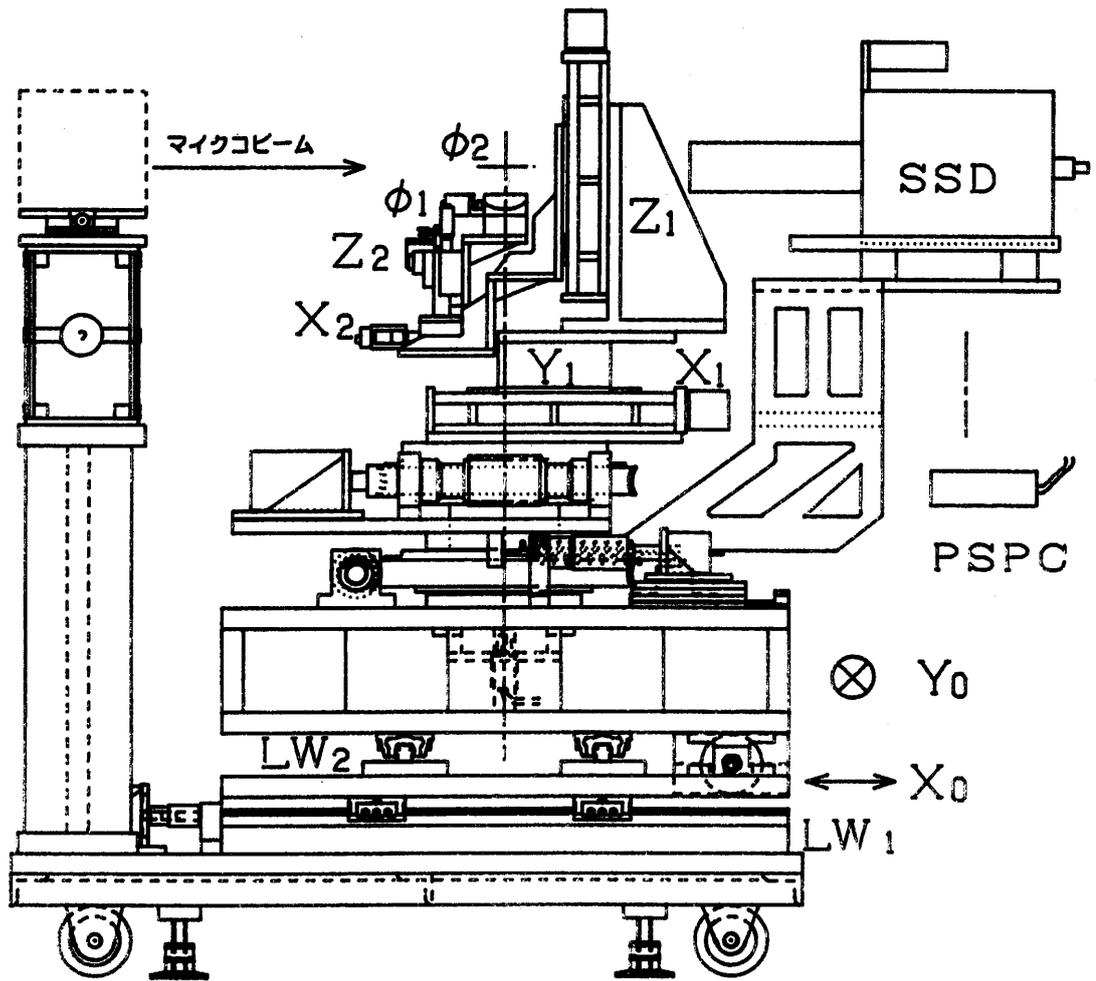


図2 装置の全体デザイン

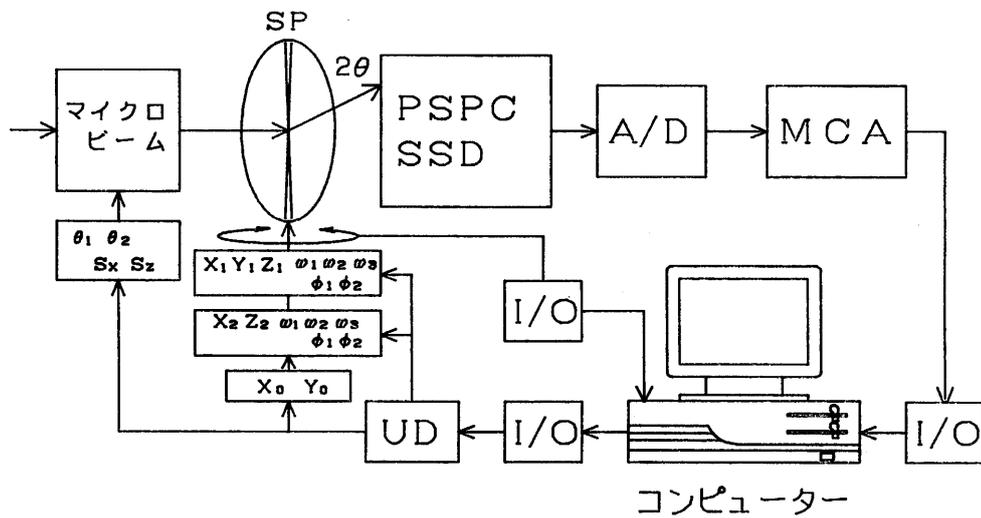


図3 制御システムのブロック図

と入射マイクロビームX線とを対応させ相対的二次元走査を行なうものである。

試料走査は基本測定とサブミクロン測定のどちらかを選択する。マイクロビームが試料に入射すると、そこからいろいろな散乱線が出るのでこれをマルチチャンネル検出器でとらえる。コンピューターはデーターを取り込みながらI/Oポートからの出力パルスによって駆動ドライバーUDを介して試料の走査装置を制御する。データーは磁気ディスクに格納し、保存すると同時にディスプレイに表示される。試料走査の位置指定や移動ステップの幅などは、すべてコンピューターによって任意に設定できる。

装置の走査制御やマイクロビーム制御は、全て入出力ボード(I/O)を介してコンピューターで行なう。入出力ボードにはコンピューターの拡張ユニットに実装するW-BUS(98)双方向入出力モジュール(コンテックK.K)を使用した。これは占有ポート数が6ポートで1ポート当り8ビットからなる。モーターの回転(正回転, 逆回転, free)に3ビット使うので、全てのモーター制御に三枚の入出力ボードを使用した。このうちシングルチャンネル検出器を使用して得たデーターの取り込みに16ビットを用いている。また、試料の回転は専用のインターフェイスでコンピューターに取り込む。

2.3 マルチチャンネル計測制御

スペクトロスコーピックX線散乱トポグラフをとるためにマルチチャンネルアナライザー(MCA)の制御システムを構築した。図3の装置で試料をブラッグ条件の角度で走査しながら、MCAシステムより各点各点の散乱X線のスペクトルを記録する。そのX線スペクトルの全てのデーターを取り込むことはコンピューターのメモリ容量に対して制限があり、困難である。そこで、スペクトルの中の注目している複数の構造情報のデーターだけを記録する制御プログラムを導入した。その内容は、

- ① 測定時間
- ② チャンネルの設定(通常1024チャンネルで使用)
- ③ 測定するチャンネルの数
- ④ 各チャンネルのエネルギー幅

で、これを以降MCA条件値という。次に走査ステップ数とステップ間隔などの観察領域条件を決めて測定を開始する。

MCA条件を決めることで、X線スペクトルの中より回折線を含む必要なスペクトルだけをいくつか抽出し、短時間でコンピューターに取り込む。回折ピークに対応するチャンネルで、X線強度最大値のチャンネル数と積分強度を選択し、実時間的にコンピューターによりデ-

ーターを組み立ててトポグラフを作り保存する。データーとしては、結晶構造分布のほか物理量(結晶方位等)の情報が一回の測定で同時に得られる。

得られたデーターは、7~24段階に分けて、カラー画像としてディスプレイ上に表示される。色調は測定データー値(散乱強度, 結晶方位等)の数値に対応させている。数値は測定値の最大値, 最小値にかかわらず自由に設定できるので、注目している領域のみを強調したりすることができる。

マルチチャンネルアナライザーにはMCA-48F(ラボラトリー・イクイップメント・コーポレーション)を使い、制御はLaboインターフェイスを介してコンピューターから行なった。

3. 試料ゴニオメーター部の設計

3.1 試料回転部

試料ゴニオメーター部は、試料を走査する三次元走査装置とサブミクロン走査装置、および試料回転部からなる。まず試料回転部から装置の制作手順にしたがって技術内容を詳しく説明する。

図2の装置の組み立て図の試料回転部は、同一軸上で三つの回転機構(ω_1 , ω_2 , ω_3)をもつ。この部分の詳細設計図を図4に示す。ハッチングで表わした部分は内部構造を示す。ゴニオメーター基台のたわみに対する機械的強度を高めるために、厚さ30(mm)、大きさ800×600(mm)の二枚の板をコの字形の柱で結合して500(Kg)以上の荷重に耐えられる頑丈な基台P₂を作った。材質はアルミニウム合金材A2017である。

まず検出器部を駆動する回転機構 ω_3 から述べる。基台中央に設置した段付きの固定軸AX₂に軸受CB₃を打ち込む。これにホイルF₂とテーブルT₂をボルトで一体にして挿入する。挿入の際は、テーブルT₂を火で熱し、膨張させて挿入する。ホイルF₂にウオームW₂を組み合わせ、駆動モータも取り付け回転機構 ω_3 を構成する。駆動方法は5相ステッピングモーター(オリエンタルモーターK.K:UPD569-B)でウオームW₂を駆動しホイルに回転を伝えテーブルT₂をまわす。テーブルの最小回転量は0.72(min)である。角度はテーブルの縁に取り付けた目盛板(1°目盛)で読み取る。

これに使用したウオーム・ホイル(小原歯車工業K.K:ウオームKWG6-R1,ホイルAGF6-60R1)は軸間距離が210(mm)、ギヤ比が60:1、モジュール6である。ホイルは、ゴニオメーターの構造からリングギヤを使用した。軸受にはスラスト荷重に強い複列円すい軸受(NSK:100KBE31+L)を使用した。ほかの軸受も円

すい系の軸受を使用する。

次に二つの回転機構 (ω_1 , ω_2) を直列につなぐため次のような工夫をする。固定軸 AX_2 に軸受 CB_2 (NSK: HR30213JDB+KLR10) を打ち込み、さらに円筒形の軸をこの軸受に打ち込み回転軸 AX_1 を作る。この回転軸に頑丈な台を取り付けて先端が下がらないように固定し、軸のまわりで自由に回転する第二の基台 P_1 を作る。図5にこの回転基台 P_1 を取り付けた写真を示す。これに二つの回転機構を構成して試料の回転を行なう。

試料を粗動回転させる回転機構 ω_1 もウォームとホイールの機構を使用する。テーブル T_1 とホイール F_1 を軸受 CB_1 (NSK: 140KE30+L) に取り付ける方法は、最初の回転機構 ω_3 と同様にテーブルを熱し膨張させてから挿入する。異なる点は、ウォーム W_1 を自由に回転する基台 P_1 上に取り付けることにある。ウォームとホイールの規格は同じものである。駆動方法も5相ステップモーター

（オリエンタルモーター K.K: UPD5913-B）とウォーム・ホイールでテーブルの最小回転量は0.72 (min) を得る。

次に精密回転機構 ω_2 を示す。これは自由に回転する基台 P_1 の裏側に、軸の中心から275 mm の位置に鋼球 B を取り付ける。この鋼球にマイクロメータヘッド MH の先端を接触させ、強力なスプリングで基台を引張り、鋼球とマイクロメータヘッドの先端が離れないようにして基台を固定する。図6に試料ゴニオメーターの写真を示す。この写真の右側にあるのが精密回転機構でマイクロメータヘッド MH を5相ステップモーター（オリエンタルモーター K.K: UPD566-B）で回して基台 P_1 を微小回転させる。写真中央に示す圧着板 PL で基台とテーブルの間を完全に固定できるようにしてあるので、これを用いることで微小な回転を1対1の関係でテーブルに伝えることができる。この回転機構の最小回転量は、

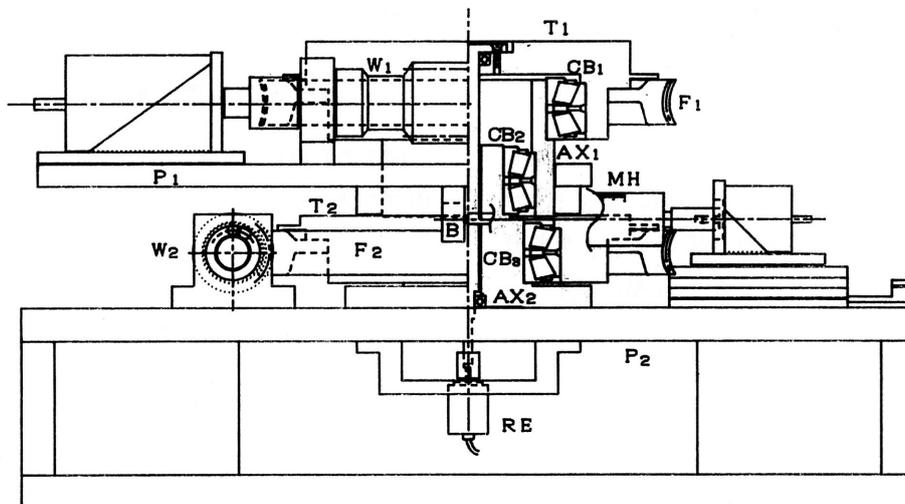


図4 試料回転部の詳細デザイン

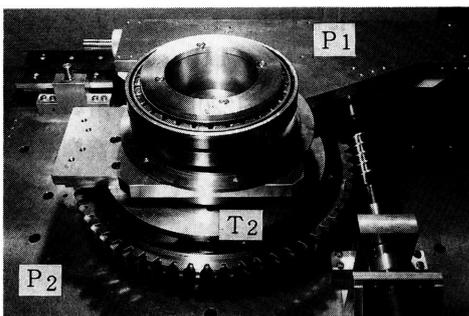


図5 試料ゴニオメーター精密回転軸の取り付け部 (回転基台)

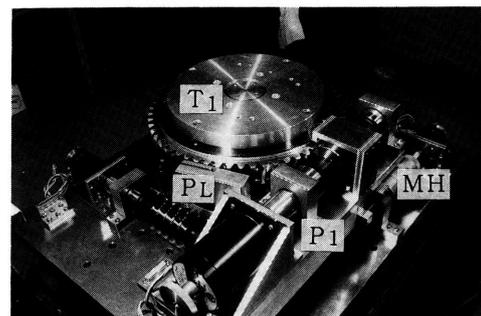


図6 粗回転および精密回転の二軸を有する試料ゴニオメーターと検出器回転機構の完成状態

0.75 (sec) である。

この微小な回転は次のような方法で検出する (図4)。テーブル T_1 からゴニオメーターの中心に沿って下方行にシャフトをのばし、深溝玉軸受で振れないように両端で止めた。これにフレキシブルカップリングを使用し、超小型で超高分解能をもつロータリーエンコーダー (Canon K.K: K-1) を取り付け、この信号パルスを1 (sec) まで表示できる専用の高分解能多機能インターフェイス (Canon K.K: CR-16) で読み取る。

各軸受 (CB_1, CB_2, CB_3) に対する中心軸とテーブルとの合わせは、装置の組み立てを人出によることと、ゴニオメーターの精度を考慮して公差 $20\mu\text{m}$ 以下の隙間ばめとした。中心軸、テーブルは、この公差の範囲内で丸棒から名人芸的な精密切削加工により切り出して制作した。

3.2 三次元走査部

前節で述べた試料回転部に試料走査部を組み立てた装置の上部写真を図7に示す。この写真左側に示すように今回は封入型 X線発生装置と、スリット系によって平行マイクロビームを発生させる管を直接基台に取り付けた。手前はシンチレーション検出器である。

写真中央の X_1, Y_1, Z_1 が散乱トポグラフィの基本装置となる三次元走査機構である。 Z_1 軸にサブミクロン走査機構 (X_2, Z_2) と試料あおり部 (ϕ_1, ϕ_2) を載せているので、この総重量を考慮して X_1, Y_1 軸に耐荷重が 24 (Kg) の精密型 XY 軸ステージ (シグマ光機 K.K: STM-80XY) を、 Z_1 軸に耐荷重が 10 (Kg) の精密型 Z 軸ステージ (シグマ光機 K.K: STM-80Z) を用いた。 X_1, Y_1, Z_1 軸ともに最小移動量は $2(\mu\text{m})$ で、駆動ドライバーのディプスイッチを切替えることで $1(\mu\text{m})$ まで可能である。

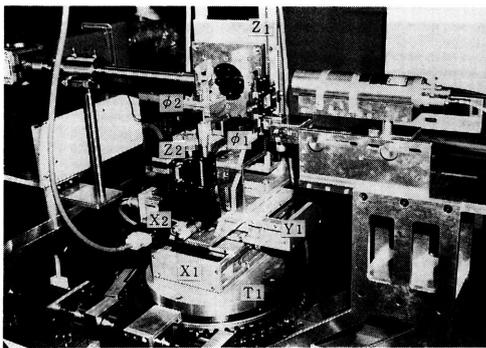


図7 マイクロビームスリットとシンチレーション検出器を取り付けた装置 (上部) 全体写真

3.3 サブミクロン走査部

図7の中央に示す X_2, Z_2 がサブミクロン走査機構である。サブミクロンオーダーの超高分解能とともに経時的安定性が要求されるので、これを満足する超微動ステージ (駿河精機 K.K: R60-80L) を選定した。 X_2, Z_2 軸ともに最小移動量は $0.002(\mu\text{m})$ で、移動量は $\pm 0.3(\text{mm})$ である。

3.4 あおり調整部

試料のあおり調整は、図7に示すサブミクロン走査機構の Z_2 に載せた二軸ゴニオステージ (ϕ_1, ϕ_2) で行う。これは超小型、軽量 (250 (g)) でコンピューター制御が容易にできる小型精密ゴニオステージ (シグマ光機 K.K: MINI-60 $\theta_x, \text{MINI-60}\theta_y$) を使用した。 ϕ_1, ϕ_2 軸ともに最小移動量は $0.002(\text{deg})$ で、最大 $20(\text{deg})$ まで可変できる。ステージ面とその回転中心までの距離は $40(\text{mm})$ である。駆動ドライバーには専用の二軸ステージコントローラー (シグマ光機 K.K: MINI-P6) を使用し、RS-232C ケーブルを用いてコンピューターから制御する。

4. 検出器の角度回転

図7の右側に示す検出器とそれを支持する台は、図5のゴニオメーターテーブル T_1 に取り付けられている。検出器の角度回転は、このウオームとギヤー、および5相ステッピングモーターで行なう。1パルス当りの角度回転は $0.72(\text{min})$ で入射 X線に対して $-20(\text{deg})$ から $160(\text{deg})$ まで回転できる。

サイズ、重量とも大きい半導体検出器 (SSD) を用いるので、これに合わせて支持台を入射 X線ビームの高さよりかなり低くしてある。ほかの検出器 (位置敏感型検出器など) を用いるには調節台とともに支持して使用する。

5. 入射マイクロビーム制御

マイクロビームには収束マイクロビームと平行マイクロビームがある。このうち収束マイクロビームは、透過法によるシリコン単結晶の (220) 反射を用い、この単結晶を一様に湾曲させて一方向に収束させ高輝度のマイクロビームを得る。この方法はすでに試作済みで $50(\mu\text{m})$ までの収束マイクロビームを達成している。さらに $10(\mu\text{m})$ まで収束させる試みを行っている。

平行マイクロビームはスリット系を用いて得る。散乱トポグラフィの観察に必要な輝度をもつ平行マイクロビームを、高出力の回転対陰極型 X線発生装置 (理学ロータフレックス RU-200) で $40(\mu\text{m})$ まで達成している。

さらにシンクロトロン放射光を用いて7 (μm) まで達成した。

6. 基台摺動部

マイクロビームの入射点に試料の回転中心を正確に一致させるために摺動部をもうけた。組み立て図(図2)の試料回転部の下に示すように、摺動部は入射マイクロビームに対して直交する方向(Y_0 軸)に摺動抵抗が小さく滑らかな直線運動が得られるリニアウエイLW₂を2本、重量バランスを考慮して平行に取り付けている。この横に送りネジを取り付けて5相ステップモーター駆動し摺動させる。 X_0 軸方向も同様である。

リニアウエイは基本動定格荷重が1520 (Kgf) のLWA25C (日本トムソンK.K) を、5相ステップモーターには励磁最大静止トルクが38 (Kg cm) のUPD5913-B (オリエンタルモーターK.K) を使用した。送りネジをステップモーターで駆動して最小摺動距離が4 (μm) となる。

7. 観察例

本装置の基本的走査機能をチェックするために、竹材をテスト試料として用いた。図8は、その竹材のセルロース分子の分布を観察した散乱トポグラフィである。この場合、散乱X線の検出にはシンチレーション検出器を使用した。測定条件は以下に示す。

X線管の電圧/電流	40 KV/20 mA
X線ターゲット	Co (特性線)
マイクロビームの直径	50 μm
画素数	120×120
ステップ距離	20 μm
各点ごとの測定時間	3.0 sec

図より、大きさが約500 (μm) のセルロース結晶が縞状

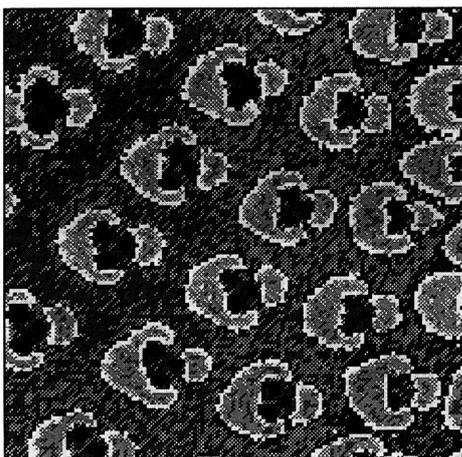


図8 竹材中のセルロース分布を示す散乱トポグラフィ

の模様を作り、竹の成長方向に垂直な繊維を形成していることが確認できた。

次に半導体検出器を用いたマルチチャンネルアナライザシステムにより、高分子複合材料であるアイオノマー (Zn添加) をその断面方向にスペクトロスコピックX線散乱トポグラフィの観察をおこなった。高分子複合材料は、いくつかの異なる性質をもった材料が組み合わされているので、その機械的特性を知るうえで、構造分布の観察は、非常に重要なことである。特に、この材料は高い耐衝撃性を有する複合材料であるので、構造上の興味がある。試料として用いたアイオノマーは機械的強度を上げるため亜鉛 (Zn) が添加されている。この方法で回折X線と蛍光X線を取り込むことで、結晶の構造分布と元素の分布を同時に観察することができる。測定条件は以下に示す通りである。

X線管の電圧/電流	40 Kv/30 mA
X線ターゲット	Mo (連続線+特性線)
マイクロビームの直径	70 μm
各点ごとの測定時間	5.0 sec

図9は構造分布の変化を幅広く観察するために、ス

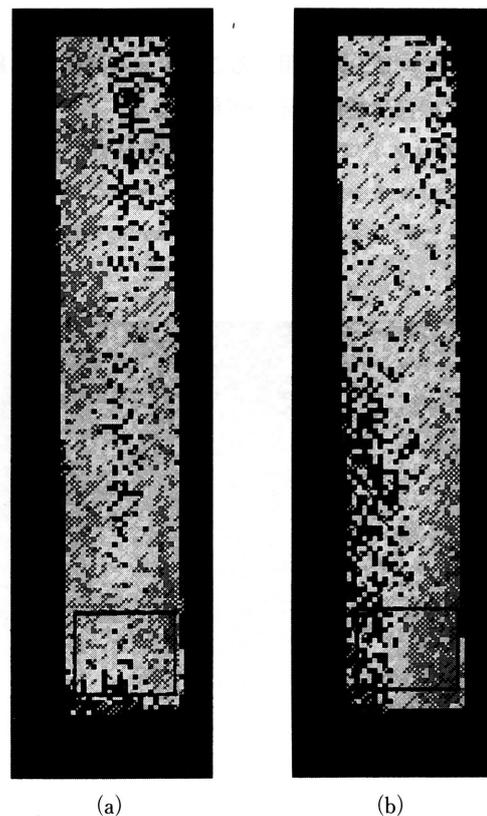


図9 高分子複合材料 (アイオノマー) のスペクトロスコピックX線散乱トポグラフィ。スケール1 mm

- (a) 17.44 KeV (MoK α) による集合組織トポグラフィ
 (b) 8.04 KeV のZnK α 蛍光線による亜鉛元素分布

トップ距離を100(μm), 画素数38 \times 150で観察したトポグラフである。(a)は17.44 KeV (MoK α)の積分強度によるトポグラフで, これは集合組織の分布を示している。(b)は8.04 KeV (ZnK α 蛍光線)の積分強度によるトポグラフで, 亜鉛元素の分布を示している。これより結晶の厚さ方向に分布強度の違いが見られる。

次に, この図の四角で囲んだ部分を拡大したトポグラフを図10に示す。ステップ距離は20(μm)で画素数100 \times 80で観察を行った。(a), (b)は同様に17.44 KeV (MoK α)と8.04 KeV (ZnK α 蛍光線)の積分強度によるトポグラフである。(a)よりアイオノマーには集合組織の分布の違いが層をなしており, 異なる材料が層状に重なっていることがわかる。(b)よりZn元素の含有量が層によって異なることがわかった。このトポグラフはアイオノマーの集合組織分布と, Znの元素分布を初めて明らかにした写真である。

8. 結 論

散乱トポグラフィを構成する基本走査装置にサブミクロンまでの分解能を有する走査装置を載せる方法で, シンクロトロン放射光に対応できるユニバーサルな高分解能散乱トポグラフィ装置の試作を行なった。1~2(μm)のマイクロビームを用いることで, 本装置はX線顕微鏡としての高分解能測定が可能となる。

これにスペクトロスコピックX線散乱トポグラフをとるためにマルチチャンネルアナライザーシステムを組み込んだ。このシステムで装置の基本走査で高分子複合

材料の観察を行ない, 本法が一般材料の構造分布の観察に有用であることが立証できた。

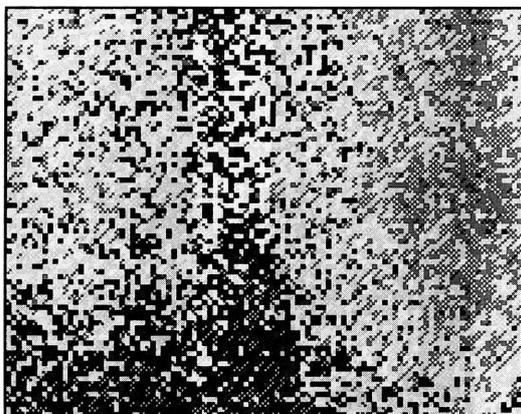
さらに1(sec)以下の高精度ゴニオメーター有するので, 平面波トポグラフィ等のX線精密光学測定分野にも応用ができる。

謝 辞

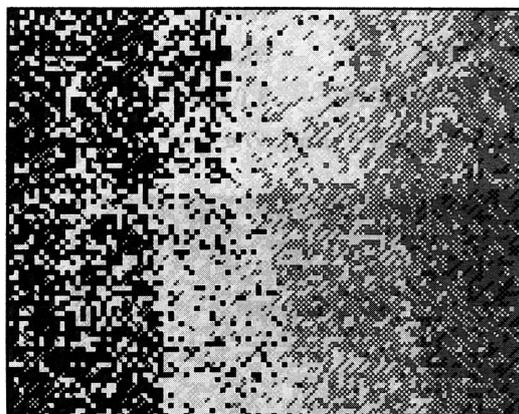
本研究は文部省科学研究費補助金(試験研究(B)04558016)によるものである。

参 考 文 献

- 1) Lang A R Modern Diffraction and Imaging Techniques in Material Science ed. Amelinks S et. al. (Amsterdam: North-Holland) (1970)
- 2) Azaroff L V, Kato N, Weiss R J, Wilson A J C and Young R A X-Ray Diffraction (New York: McGraw-Hill) (1974)
- 3) Tanner B K X-Ray Diffraction Topography (Oxford: Pergamon) (1976)
- 4) Chikaura Y, Yoneda Y and Hildebrandt G: J. Appl. Crystallogr. 15 48-54 (1982)
- 5) Yoneda Y and Chikaura Y: Z.Naturforsch 37a 412-18 (1982)
- 6) 近浦吉則, 城井英樹, 玉城 進: 応用物理 54 1101-7 (1985)
- 7) 近浦吉則, 浅田良治, 松下吉宏, 上松弘明: 応用物理 54 159-65 (1985)
- 8) 近浦吉則, 白石 裕, 小川 透, 上松弘明: 応用物理 55 983-9 (1986)
- 9) Ushigami Y, Suga Y, Takahashi N, Kawasaki K, Chikaura Y and Kii H: J.Mater.Eng. 13 113-8 (1991)
- 10) Suzuki Y, Chikaura Y and Akazaki T: Appl. Phys. Lett. 56 1856-8 (1990)
- 11) Suzuki Y, Chikaura Y: J. Appl. Phys. 70 1290-4(1991)



(a)



(b)



図10 アイオノマーのスペクトロスコピックX線散乱トポグラフの顕微写真。スケール 200 μm

- (a) 17.44 KeV (MoK α)による集合組織トポグラフ
- (b) 8.04 KeVのZnK α 蛍光線による亜鉛元素分布

- 12) Chikaura Y and Takata Y: Japan. J. Appl. Phys. 29
L378-80 (1990)
- 13) Chikaura Y and Suzuki Y: J. Appl. Crystallogr. 26
219-25 (1993)
- 14) Chikaura Y, Suzuki Y and Udagawa Y: J. Appl. Phys.
26 2212-18 (1993)
- 15) Chikaura Y, Suzuki Y and Kii H: Japan. J. Appl. Phys.
33 L204-L206 (1994)