

X線トポグラフィ研究の近未来展望

X-ray Topography at SPring-8 in the Next Decade

X線トポグラフィ研究会
X-ray Topography Research Group

飯田 敏, 富山大学
志村考功, 大阪大学
Satoshi Iida, *University of Toyama*
Takayoshi Shimura, *Osaka University*

1. はじめに

X線トポグラフィは結晶中の格子欠陥や格子歪、誘電体や磁性体の分域構造のような構造不均一の実空間分布をX線の回折・散乱によってコントラストをつけて非破壊で可視化しようとするイメージング手法である。シンクロトロン放射光の出現によってX線トポグラフィは大きく進展し、単結晶材料の評価法として確立した技術となっている。X線トポグラフィ技術のさらなる高度化や関連するソフトウェアの整備により、X線トポグラフィの材料科学、技術における重要性はいつそう増加し、その適応範囲が拡大されると考えられる。

2. X線トポグラフィに関する技術・手法

X線トポグラフィ技術では、位置分解能、時間分解能、観察時に試料が置かれる環境、トポグラフィメージの高次元化、スピンや軌道状態などの空間分布可視化に関する進展が期待される。

X線トポグラフィの位置分解能は現状では $1\mu\text{m}$ 程度であるが、 μm から nm 、サブ nm へのさらなる位置分解能の向上が望まれる。これにより、結晶評価においてX線トポグラフィと透過型電子顕微鏡や各種X線顕微鏡との相補的利用が進展する。X線トポグラフィの位置分解能の向上のためには、高分解能二次元X線検出器の開発が必要である。また、X線検出器自身の位置分解能とは別に、トポグラフィ像拡大の手法開発も検討する必要がある。これらの位置分解能の向上はX線トポグラフィの特徴である広い視野や試料の非破壊観察と両立する形で進展することが望ましい。位置分解能が向上して観察対象がさらに小さくなると、観察対象物の大きさがX線のコヒーレンス長より小さくなる。単位胞によるブラッグ回折だけでなく、観察対象物のコヒーレントX線回折を考慮した位相解析を行い、検出器の分解能に制限されない原子レベルの位置分解能の達成を目指す。

X線トポグラフィでは試料結晶を非破壊で実時間観察することができる。そのため、試料結晶の外部環境の変化に対する応答、あるいは試料結晶の自発的变化を高い時間分解能で観察することが可能である。X線トポグラフィの時間分解能の向上のためには高感度高速二次元X線検出器が必要であり、通常用いられるビデオレート(30フレーム/秒)の測定が μs スケールで可能になれば動的観察の適用範囲が広がる。

試料結晶を実際の実環境下においてその場観察することが期待されており、試料が観察される外場・環境としては、高温、低温、高圧力、各種ガス雰囲気、電場、磁場などをあ

げることができる。バルク結晶あるいはエピ結晶の成長過程のその場観察や試料結晶の破壊過程のその場観察も興味深い対象である。

通常のX線トポグラフィ像は結晶中の三次元内部高次構造の回折線の方向への二次元投影像である。現在、二次元投影像から三次元の立体的内部構造可視化への取り組みを積極的に進めており、蛍石のサブグレインや CZ シリコンの転位線の三次元分布評価に成功している。三次元可視化技術はその測定法やデータ処理の両面において今後も大いに進展すると考えられる。さらに、空間の三次元、さらに時間軸を加えて四次元観察へと進むことが予想される。通常の意味での次元とは意味が異なるが、X線トポグラフィと蛍光マッピング、顕微ラマン、顕微 PL、顕微 FTIR 等の他の顕微的手法との組み合わせ、複合同時計測による「高次元化」も進展する。

これまで格子歪分布の定量的測定にはゴニオメトリー（複結晶配置を用いた逆格子空間内の測角精度の高い精密回折強度分布測定）が用いられることが多かった。今後は結晶格子歪の実空間分布を測定するX線トポグラフィとゴニオメトリーとの併用・融合が進むと考えられる。

白色X線を用いたラウエトポグラフィ法のセッティングの容易さ、どんな対象物でもその内部構造が見えると言う有効性はいっそう認識され、巨大試料の非破壊内部観察など、その適用範囲の拡大が期待される。さらなる発展のためにX線トポグラフィに利用可能なエネルギー分解能のある二次元X線検出器の開発が望まれる。白色X線に変えてピンクビームの利用も有効であろう。

X線磁気散乱や電子の軌道状態、多極子秩序を反映した回折強度が測定にかかるようになってきた。これまでは電荷を通した結晶の内部構造、高次構造の可視化が行われてきたが、スピンや軌道秩序を通した可視化への試みが始められると思われる。

3. X線トポグラフィに関するソフトウェア、ユーザー支援環境の整備

X線トポグラフィ像の取得、格子欠陥などの空間分布の可視化からさらに進んで、格子歪分布の定量的評価を行おうとすれば、X線トポグラフィ像の回折物理学に基づく解析が必要になる。また格子欠陥の動力学的像も結晶内歪分布の定量的計測に有用である。主な関心が評価方法よりは材料やデバイスの開発にある研究者にもX線トポグラフィが結晶評価ツールとして使えるように支援環境を整備することによって、X線トポグラフィの利用、適応範囲の拡大を行う。具体的な整備の内容としては、X線トポグラフィ像の計算機シミュレーション・ソフトウェアの開発、X線トポグラフィに関するデータベースの整備、得られたX線トポグラフィ像の表示、解析ソフトの開発などがある。

4. X線トポグラフィの適応範囲の拡大

X線トポグラフィはバルク結晶の評価に用いられ、これまでに多くの成果をあげてきたが、今後は薄膜結晶、結晶表面・界面構造、ナノ構造のイメージングへとその適用範囲の拡大を行う。極微小角入射X線回折条件下でシリコン SOI 構造や SiGe 歪エピタキシャル膜結晶のトポグラフィ像が得られており、厚さ数 10nm という極々薄い結晶の格子歪分布の評価に成功している。今後、種々の極薄い結晶や表面・界面の結晶

性評価を進める。

これまでX線トポグラフィは単結晶を基本とする試験片の評価に用いられてきた。しかし、我々の身の回りの実用材料は単結晶であることは少なく、多くは多結晶であったり、制御された組織構造を持つ複合物であったりすることが多い。これまでに、高エネルギー白色X線マイクロビームを用いたX線散乱トポグラフィによって、多結晶であるオーステナイト系ステンレスの結晶粒内のひずみ分布評価に成功してきた。今後はさらに実際に使われる実材料を実際に使われる実環境に近い条件下で評価する手法の開発を進める。

X線トポグラフィによる結晶性評価は無機結晶だけでなく、有機結晶、たんぱく質結晶、さらには生体材料、細胞膜のような柔軟な秩序構造の評価へと適用範囲を拡大していく。特に有機結晶やたんぱく質結晶のように単位胞が大きく、単位胞の構造も複雑な結晶中の格子欠陥は単位胞の小さな単純な無機結晶の格子欠陥とは質的に異なっているとの指摘もあり、不明な点も多い。これらの結晶中の格子欠陥評価はX線トポグラフィ以外の方法では難しく、X線トポグラフィによる結晶評価がこれらの結晶性の向上に大きく寄与すると思われる。

強相関係物質や材料の示す物性に大きな興味・関心が集まっている。競合する相互作用や性質の異なる相互作用が同時に大きな役割を果たすときには、長距離にわたる秩序構造の発現が期待される。強相関係物質における電荷、スピン、軌道のX線トポグラフィによるイメージングは興味ある対象であり、その実現に向けて準備が開始される。試料結晶の結晶性の向上と共に共鳴X線散乱法に必要な低温環境等の整備や技術開発が必要となってくる。