

専用ビームラインの研究から  
 ~BL24XU (兵庫県) ~

## 多波近似条件近傍での明視野 X 線トポグラフィ

兵庫県立大学 大学院物質理学研究科  
 津坂 佳幸、鶴丸 哲也、水落 博之  
 鎌本 春花、藤田 優  
 兵庫県立大学 放射光ナノテクセンター  
 松井 純爾

### Abstract

明視野 X 線トポグラフィを、サファイア結晶の転位観察に適用した。通常の X 線トポグラフィでは回折像の撮像を行うが、明視野トポグラフィでは透過像を撮像する。このとき、複数の回折面で回折が生じる多波回折条件近傍で撮像すると、回折ベクトルを変更しても結晶の位置や形状が変化することのない像が得られる。結晶による吸収がそれほど大きくない場合 ( $\mu t \sim 1$ ) は、透過像と回折像は相補的であるため、通常の Lang 法と同様に転位のバーガスベクトルが決定できる。また、検出器に可視変換型の CMOS カメラを用いると、その高空間分解能や検出感度の広い直線性から、 $10^5/\text{cm}^2$  程度の転位密度の試料まで転位観察が可能である。加えて回折条件からわずかに外した像を用いて数値処理を行うと、ビームの強度ムラのない像を得ることができる。

### 1. はじめに

X 線トポグラフィは単結晶の欠陥や析出物<sup>1,4</sup>などの転位やその他の欠陥を調べるために広く使用されており、特に転位のバーガスベクトルの決定に有用である。通常トポグラフでは、結晶内の個々の転位を視覚化するために、X 線フィルムや原子核乾板を使用して記録する。各転位のバーガスベクトルは、異なる回折ビームを使用するいくつかの画像からコントラストの消失によって決定されるが、これらの画像は、回折の光学配置に依存して結晶の元の形状から変形する。元の形状を回復するために、トポグラフ上で 1 つまたは 2 つの方向に画像解析ソフトなどを用いて電子的に縮小拡大されるが、この操作は空間分解能を低下させる。2 波近似の X 線回折の動力学理論<sup>5</sup>によると、回折されたビームと前方透過されたビームによって得られる転位像は、結晶の吸収率が小さい場合 ( $\mu t < 1$ 、ここで  $\mu$  は線吸収係数、 $t$  は試料中の X 線ビームの侵入深さである)、コントラストが反転する。以下、前者のビームを用いたトポグラフを暗視野トポグラフ、後者のそれを明視野トポグラフと呼ぶ。したがって、暗視野または明視野トポ

グラフィのいずれかを使用して、転位のバーガスベクトルを決定することができる。Yi らは、明視野透過型電子顕微鏡法 (TEM) と同様に、4H-SiC 結晶の格子歪みを調べるために、明視野 X 線ビームトポグラフィを利用している<sup>6</sup>。

本研究では、複数の回折が同時に生じる多波近似条件近傍で、明視野トポグラフを撮像する。このため、トポグラフ像に形状変形が生じない。コヒーレントな X 線ビームを用いて多波回折を生じさせたときのビームの干渉パターンは、沖津らによる報告があるが<sup>6,7</sup>、本研究で用いたビームはインコヒーレントであるため、トポグラフ像にこれらの干渉パターンが際立つことはない。

### 2. 多波近似条件

完全性が高い結晶に X 線が入射する場合、結晶中には入射方向の波 (O 波) と回折方向の波 (G 波) が生じる。通常の実験条件では結晶中には G 波は 1 つだけであり (その他の波はととても小さい)、O 波と合わせて 2 波近似と呼ばれる。それに対して、特定の指数の回折を考える場合、結晶と入射ビームのアラインメ

ントを精密に調整すると、複数の G 波を励起することができる。この条件が満たされる場合を多波近似条件と呼ぶ。

本実験で用いたサファイア結晶は六方晶であり、例えば、 $4\bar{2}20$ 、 $3\bar{3}00$ 、 $30\bar{3}0$ 、 $1\bar{2}10$ 、 $11\bar{2}0$  の 5 つの回折波を同時に励起することができる。この場合、0 波と合わせて結晶中に 6 つの波が生じるため 6 波近似と言う。同時に回折が生じる場合を実空間で説明すると以下の通りである。図 1(a)のように六方晶の  $a_1$ 、 $a_2$ 、 $a_3$ 、 $c$  軸をとる。また、図 1(b)に示すように、 $(4\bar{2}20)$ 、 $(3\bar{3}00)$ 、 $(30\bar{3}0)$ 、 $(1\bar{2}10)$ 、 $(11\bar{2}0)$ 面に平行な面をとる。図 1(c)のように  $xyz$  座標をとると、図 1(b)の矢印で示した 5 つの面の法線ベクトルは、 $(4\bar{2}20)$ 面から順に、 $(0, 1, 0)$ 、 $(0, \cos 30^\circ, \sin 30^\circ)$ 、 $(0, \cos 30^\circ, -\sin 30^\circ)$ 、 $(0, \cos 60^\circ, -\sin 60^\circ)$ 、 $(0, \cos 60^\circ, \sin 60^\circ)$ で表される。以下同時に生じる回折に関して、 $4\bar{2}20$ 回折と  $3\bar{3}00$ 回折のみについて述べる。 $4\bar{2}20$ 回折のブラッグ角を  $\theta_{4\bar{2}20}$  とし、結晶を図 1(b)の状態から  $z$  軸まわりに  $\theta_{4\bar{2}20}$  だけまわすと、 $(4\bar{2}20)$ 、 $(3\bar{3}00)$ 面の法線ベクトルはそれぞれ、 $(-\sin \theta_{4\bar{2}20}, \cos \theta_{4\bar{2}20}, 0)$ 、 $(-\sin \theta_{4\bar{2}20} \cdot \cos 30^\circ, \cos \theta_{4\bar{2}20} \cdot \cos 30^\circ, \sin 30^\circ)$ となる (図 1(d)参照)。X 線と回折面のなす角は、X 線の方法線ベクトルと回折面の法線ベクトルの内積を使って求めることができる。図 1(e)のように、X 線の方法線ベクトルと回折面の法線ベクトルのなす角を  $\theta$ 、X 線の方法線ベクトルと回折面のなす角を  $\alpha$  とする。方向ベクトル、法線ベクトル共に大きさは 1 だから、その内積は、

$$\cos \theta = \cos(90^\circ + \alpha) = -\sin \alpha$$

である。これを先程の  $\theta_{4\bar{2}20}$  だけ回転した  $(4\bar{2}20)$ 面の法線ベクトル  $\mathbf{n}_1(-\sin \theta_{4\bar{2}20}, \cos \theta_{4\bar{2}20}, 0)$  と X 線の方法線ベクトル  $\mathbf{l}(1, 0, 0)$  に適用すると、

$$\mathbf{n}_1 \cdot \mathbf{l} = -\sin \theta_{4\bar{2}20}$$

これが、 $-\sin \alpha$  に等しいので、 $\theta_{4\bar{2}20} = \alpha$  と当然の結果が得られる。

同様に  $\theta_{4\bar{2}20}$  だけ回転した  $(3\bar{3}00)$ 面の法線ベクトル  $\mathbf{n}_2(-\sin \theta_{4\bar{2}20} \cdot \cos 30^\circ, \cos \theta_{4\bar{2}20} \cdot \cos 30^\circ, \sin 30^\circ)$  と X 線の方法線ベクトル  $\mathbf{l}(1, 0, 0)$ 、X 線と回折面のなす角  $\alpha_1$  に適用すると、

$$\begin{aligned} \mathbf{n}_2 \cdot \mathbf{l} &= -\sin \theta_{4\bar{2}20} \cdot \cos 30^\circ \\ &= -\frac{\sqrt{3}}{2} \sin \theta_{4\bar{2}20} = -\sin \alpha_1 \end{aligned}$$

である。ブラッグの法則から、 $\sin \theta_{4\bar{2}20} = \lambda/2d_{4\bar{2}20}$  だから、これを上式に代入して、

$$\lambda = \frac{4}{\sqrt{3}} d_{4\bar{2}20} \sin \alpha_1$$

を得る。六方晶では、 $d_{3\bar{3}00} = \frac{2}{\sqrt{3}} d_{4\bar{2}20}$  なので、上式は、

$$\lambda = 2d_{3\bar{3}00} \cdot \sin \alpha_1$$

となり、 $3\bar{3}00$  回折も同時に回折条件を満たすことがわかる。

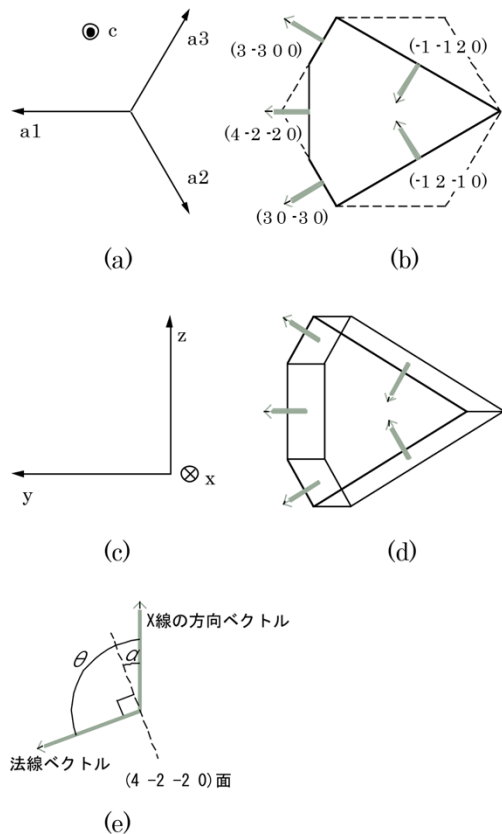


図 1 (a) 六方晶の基本ベクトル、(b)  $(4\bar{2}20)$ 、 $(3\bar{3}00)$ 、 $(30\bar{3}0)$ 、 $(1\bar{2}10)$ 、 $(11\bar{2}0)$ 面、(c) 座標軸、(d) (b)の状態から  $z$  軸周りに  $\theta_{4\bar{2}20}$  だけ回転したときの模式図、(e) 法線ベクトルと方向ベクトルの関係。

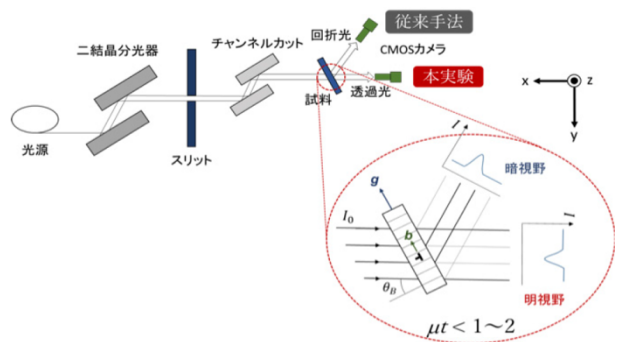


図 2 本実験での実験配置。

### 3. 実験

実験は SPring-8 BL24XU (兵庫県 ID) で行った。二結晶分光器で 15 keV の X 線を選択し、4 象限スリットで  $1 \times 1 \text{ mm}^2$  にビームを整形した。このときの波長幅 ( $\Delta \lambda / \lambda$ ) は  $3 \times 10^{-4}$  である。試料は、鏡面研磨したサファイア単結晶で表面は(0001)面である。撮像は可視変換型の CMOS カメラ (Hamamatsu, C11440-22CU) で、蛍光体には GAGG ( $\text{Gd}_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}$ ) シンチレータを用いた。この組み合わせで、 $1 \mu\text{m}$  のラインアンドスペースの分離が可能である。その光学配置を図 2 に示す。

図 3(a) は 6 波を励起したときの蛍光板像である。O で示したスポットは、サファイア結晶上の点 P を透過した透過ビームであり、A-E のそれは、それぞれ  $4\bar{2}20$ 、 $3\bar{3}00$ 、 $30\bar{3}0$ 、 $1\bar{2}10$ 、 $11\bar{2}0$  の 5 つの回折ビームである。図 3(a) の状態から OB を結ぶ直線を回転軸に結晶をわずか  $0.1^\circ$  程度回転すると図 3(b) の蛍光板像が得られる。このとき結晶内には入射方向の波と  $3\bar{3}00$  回折の方向の波の 2 波近似が成り立つ。その他の回折も O とその回折スポットを結ぶ直線の周りのわずかな回転で 2 波近似が成立する。このため、回折ベクトルを変更しても入射方向からみた結晶の外形はほとんど変化がなく、また透過ビームを撮像するためトポグラフィ像に現れる転位線の位置や形状も変化しない。

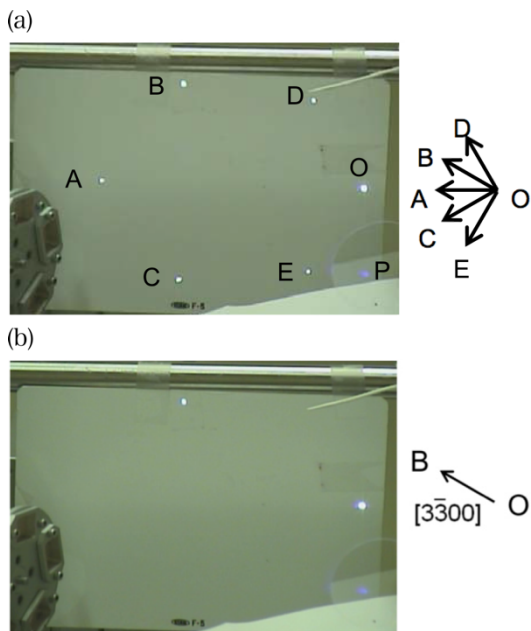


図 3 (a) 6 波近似時の蛍光板像、(b) 2 波近似時の蛍光板像。

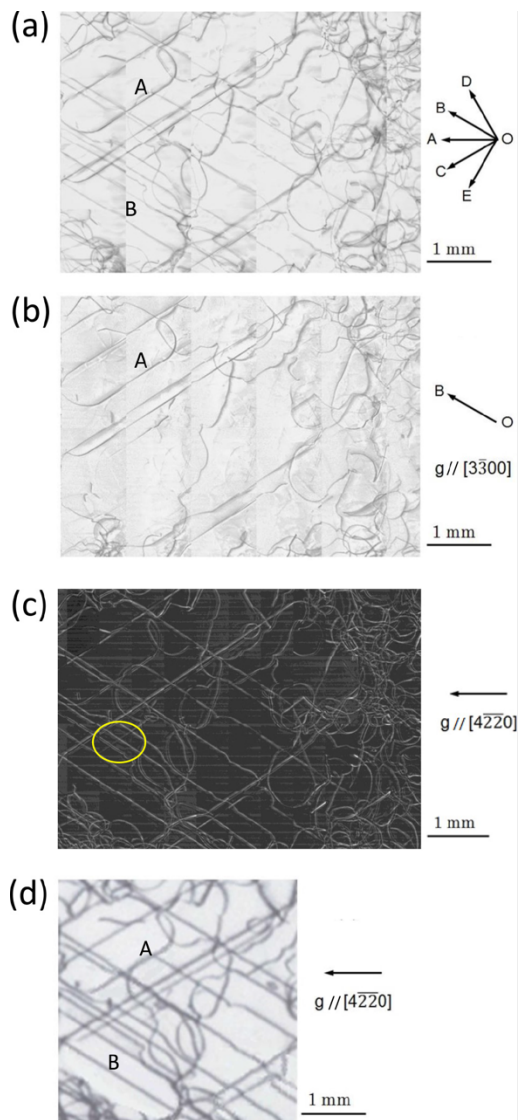


図 4 (a) 明視野 6 波近似条件でのトポグラフィ像。CMOS カメラで撮像。図 3(a) の 6 波を励起した状態で撮像。(b) 明視野 2 波近似条件でのトポグラフィ像。CMOS カメラで撮像。図 3(b) の 2 波を励起した状態で撮像。(c) 暗視野トポグラフィ像。CMOS カメラで撮像。図 3(a) のスポット A を励起した状態で撮像。(d) 実験室光源でのトポグラフィ像。X 線フィルムで撮像。(a)~(c) は水平方向 6 ショット、鉛直方向 5 ショットをつなぎ合わせたもの。(a) と (b) の比較から B で示す転位線のバーガスベクトルが OB 方向に直交し、またこの転位の伸びている方向が OB 方向と平行であるため、刃状転位であることがわかる。(c) の黄色丸で示した領域の転位線の間隔が、(a) の像と比べて広がっていることが確認できる。これは回折像を撮影したため、像の変形が起きていることを示す。(a)~(c) の画像の分解能は、(d) の画像の分解能より格段に向上していることが確認できる。

4. 結果と考察

図 4(a), (b)はそれぞれ図 3(a), (b)の 6 波近似状態と 2 波近似状態でのトポグラフ像で、水平方向 6 ショット、鉛直方向 5 ショットをつなぎ合わせている。これらのトポグラフ像では、転位線の位置や形状に変化がないことがわかる。これは、明視野かつ多波近似近傍でのトポグラフ撮像のためである。

図 4(a)で、A で示された転位線は図 4(b)でも現れているのに対し、B で示された転位線は、図 4(b)ではコントラストが消失していることがわかる。一般に回折ベクトル  $g$  と転位まわりの歪みを表すバーガースベクトル  $b$  が直交するとき、そのコントラストは消失または弱くなる。このことから、B で示した転位線のバーガースベクトルは OB 方向に直交でまた、転位線の伸びている方向が OB 方向であるため、この転位は刃状転位であることがわかる。これは、明視野トポグラフィであっても、通常の Lang 法で用いられる転位のバーガースベクトルの決定が可能であることを示している。

図 4(c)は、 $\sqrt{4220}$  回折のみを励起したときの暗視野トポグラフ像（回折像）で、図 4(a)と同じ領域を撮像している。このトポグラフ像は、おおむね図 4(a)のコ

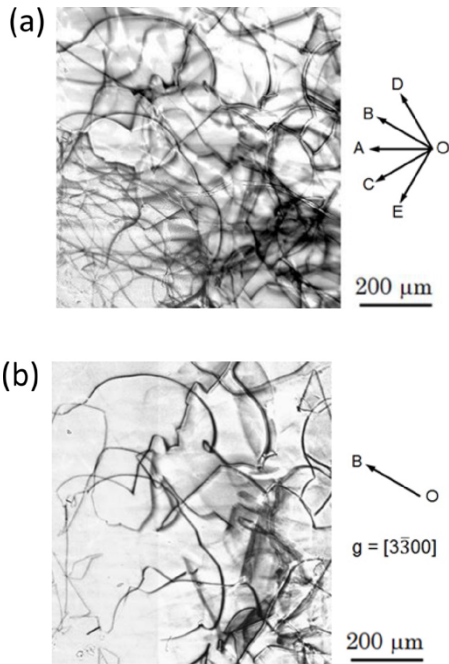


図 5 高転位密度領域のトポグラフ像。(a) 6 波近似条件でのトポグラフ像。(b) 2 波近似条件でのトポグラフ像。下側の領域での転位密度は  $3 \times 10^4 / \text{cm}^2$  程度である。

ントラストの反転であるが、一方、黄色丸で囲った領域の転位線の間隔が広がっていることが確認できる。これは、暗視野トポグラフィでの転位線の形状の変形である。

図 4(d)は実験室光源で X 線フィルムを用いて取得した同じ領域のトポグラフ像である。SPring-8 で CMOS カメラを用いた撮像の空間分解能が高いことがわかる。

図 5(a), (b)は、図 4(a), (b)と同じ条件で比較的転位密度の高い領域を撮像したトポグラフ像の拡大図である。下側の比較的転位密度の高い領域でも個々の転位線が細い線として分離されている。この領域の転位密度は  $3 \times 10^4 / \text{cm}^2$  程度であり、これまで X 線トポグラフィでは分離が難しいとされていた  $10^4 / \text{cm}^2$  でも

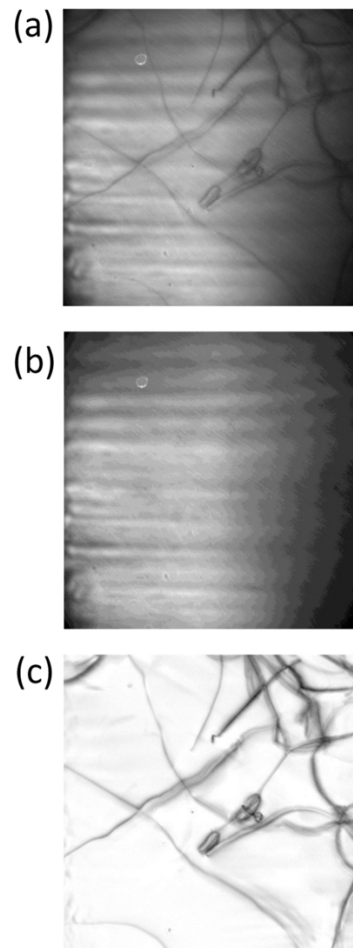


図 6 (a) オリジナルのトポグラフ像、(b) ロッキングカーブのピークから結晶をわずかに回転し、回折条件を満たさない状態で得られたビームの透過像。(a)の強度分布を(b)の強度分布で除して得られた像が(c)である。

撮像可能であることを示している。この要因としては、検出器の空間分解能や検出感度の高い線形性によるところだけでなく、SPring-8の輝度が高いためでもある。CMOSカメラでの1ショットの露光は、数10 msecで十分S/N比の高い画像がリアルタイムで得られる。このためロッキングカーブのピークまたはテールでの撮像も迅速で、転位線を細く撮像できる条件調整が容易であるためである。

放射光を用いたトポグラフィでは、Be窓や分光器が原因の入射ビームの強度ムラがしばしば問題になるが、明視野トポグラフィではその問題も解決可能である。図6(a)はある領域で撮像したオリジナルのトポグラフィ像、図6(b)はロッキングカーブのピークから結晶をわずかに回転し、回折条件を満たさない状態で得られたビームの透過像である。図6(a)の強度分布を図6(b)の強度分布で除して得られた像が図6(c)である。図6(a)と比べて、バックグラウンドの強度ムラが解消されている。

## 5. まとめ

本研究では、多波近似条件近傍での明視野トポグラフィをサファイア結晶に適用し、転位線の観察を行った。高輝度なX線光源を利用し、画像検出器にCMOSカメラを用いることで、以下に述べるメリットがあることを示した。

1. 高輝度放射光を利用し、検出器に高空間分解能・検出感度の高い線形性を持つCMOSカメラを用いることで、高分解能のトポグラフィ像が得られる。これまで $10^4/\text{cm}^2$ 以上の転位密度を持つ試料の観察が困難と考えられていたX線トポグラフィが $10^6/\text{cm}^2$ 程度のその観察まで可能性があることを示す。一方で、電子顕微鏡では $10^6/\text{cm}^2$ 以下の転位密度の試料の観察は困難とされており、観察の難しい領域を簡便な方法で埋める可能性を示した。
2. 回折ベクトルを変更しても転位線の位置や形状が変形することはない。これは、コントラストの消失から判断する転位のバーガスベクトルの決定に大変有用である。
3. 回折ベクトルの変更が容易で、また検出器の移動がないため、異なる回折ベクトル撮像が迅速である。

4. リアルタイム観察が可能であるため、良好なコントラストを得ることができる撮像条件の調整が迅速である。

## 参考文献

- [1] D. K. Bowen and B. K. Tanner: *High Resolution X-Ray Diffraction and Topography* (Taylor & Francis, London, 1998).
- [2] *J. Appl. Phys.* **28**, No.4A, A17-A91 (1995), *Special Issue: X-ray topography and high resolution diffraction.*
- [3] J. M. Yi, J. H. Je, Y. S. Chu, Y. Zhong, Y. Hwu and G. Margaritondo: *Appl. Phys. Lett.* **89** (2006) 074103.
- [4] *J. Japanese Association for Crystal Growth* **54**, No.1 (2012), *Special Issue: Recent Advances in X-ray Topography* [in Japanese].
- [5] For example, A. Authier: *Dynamical Theory of X-Ray Diffraction* (Oxford University Press, Oxford, 2001).
- [6] K. Okitsu: *Acta Crystallogr., Sect. A* **59** (2003) 235-244.
- [7] K. Okitsu, Y. Imai, Y. Ueji and Y. Yoda: *Acta Crystallogr., Sect. A* **59** (2003) 311-316.

### 津坂 佳幸 *TSUSAKA Yoshiyuki*

兵庫県立大学 大学院物質理学研究科  
〒679-1297 兵庫県赤穂郡上郡町光都 3-2-1  
TEL : 0791-58-0231  
e-mail : tsusaka@sci.u-hyogo.ac.jp

### 鶴丸 哲也 *TSURUMARU Tetsuya*

兵庫県立大学 大学院物質理学研究科  
〒679-1297 兵庫県赤穂郡上郡町光都 3-2-1  
TEL : 0791-58-0229  
e-mail : ri16q025@stkt.u-hyogo.ac.jp

### 水落 博之 *MIZUOCHI Hiroyuki*

兵庫県立大学 大学院物質理学研究科  
〒679-1297 兵庫県赤穂郡上郡町光都 3-2-1  
TEL : 0791-58-0229  
e-mail : ri17x025@stkt.u-hyogo.ac.jp

### 鎌本 春花 *KAMAMOTO Haruka*

兵庫県立大学 大学院物質理学研究科  
〒679-1297 兵庫県赤穂郡上郡町光都 3-2-1  
TEL : 0791-58-0229  
e-mail : ri17b007@stkt.u-hyogo.ac.jp

藤田 優 FUJITA Yu

兵庫県立大学 大学院物質理学研究科  
〒679-1297 兵庫県赤穂郡上郡町光都 3-2-1  
TEL : 0791-58-0229  
e-mail : ri18x026@stkt.u-hyogo.ac.jp

松井 純爾 MATSUI Junji

兵庫県立大学 放射光ナノテクセンター  
〒679-5165 兵庫県たつの市新宮町光都 1-49-2  
TEL : 0791-58-1415  
e-mail : matsui@hyogo-bl.jp

産業利用の課題を随時受け付けております。  
詳細につきましては下記ウェブサイトまたは連絡先まで  
お問合せください。  
<http://www.hyogo-bl.jp/>  
兵庫県ビームライン事務局  
TEL : 0791-58-1961  
e-mail : nanochan@hyogo-bl.jp