

異常散乱現象を利用した蛍光X線ホログラフィー技術の開発

高橋 幸生^a、林 好一^b、松原 英一郎^b

^a東北大学大学院工学研究科、^b東北大学金属材料研究所

背景: 蛍光 X 線ホログラフィー(XFH)は、蛍光 X 線を発する特定元素周りの 3 次元構造を直接決定できる手法である。XFH 法は半導体中のドーパント¹⁾の局所構造評価に適用され有望視されており、ナノテクノロジー材料の開発の進展に多いに貢献できると考えられている。XFH を物質の構造解析に適用する際、問題となるのがツイニメージである。ツイニメージの発現は、我々の観測可能な X 線の強度情報からでは位相情報のコサイン成分しか得られないことに起因している。ツイニメージは、本来原子の存在しない位置に原子像を生じさせ、実像と重なりあうことより原子像を歪ませる原因となる。この問題を解決する方法として Barton によって考案された多重エネルギー法²⁾や、西野によって考案された 2 エネルギー法³⁾がある。

我々はツイニメージを解消する方法として新たに複素 X 線ホログラフィー(CXH)法を考案した⁴⁾。CXH 法は元素の吸収端近傍の共鳴散乱を利用し、再生像の元素識別も可能とする。しかしながら、通常の蛍光 X 線ホログラムのシグナルが 10^3 のオーダーであるのに対して、複素 X 線ホログラムのシグナルは $10^4 \sim 10^5$ のオーダーであるため実験が困難である。

装置開発: CXH 法で最低必要な 0.01% 程度の強度変動を測定するために、SPring-8 の BL37XU に据え付けてあるホログラフィー装置の改良を行った。図 1 に装置の外観を示す。まず、 N_2 ガス吹き付け型クライオストリームにより試料を約 100K まで冷却するシステムを開発した。これにより原子の熱振動の寄与が軽減されホログラムのシグナルが室温測定時に比べ 10~30% 増大した。また、円筒状グラファイトアナライザーの開発も行った。グラファイトは以前アナライ

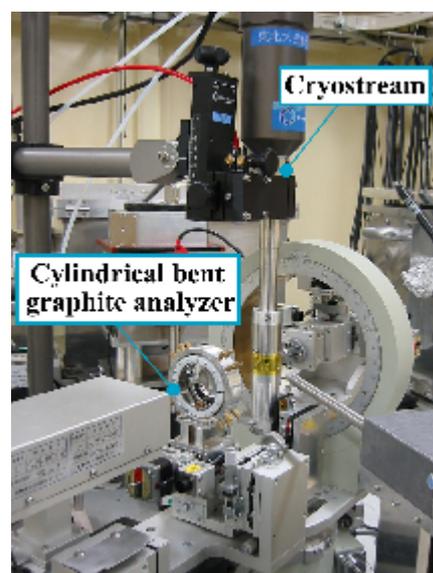


図 1 改良型ホログラフィー装置の外観。

ザーに使用していた LiF 結晶に比べて反射率が大きく、高強度の蛍光 X 線の分光が可能である。使用した湾曲グラファイトは松下電器産業が開発した高分子フィルムを加圧成形する技術により作製されており、板状のグラファイトをクリープ変形させ湾曲させていた従来型のものに比べ、高品位で大きな曲率を有する。本装置では曲率半径 25mm の湾曲グラファイトを 4 枚ならべて円筒とした。

実験: 改良したホログラフィー装置の性能評価を BL37XU にて行った。実験配置を図 2 に示す。 θ は試料表面と入射 X 線のなす角であり、 ϕ は試料垂直軸まわりの方位角である。試料には GaAs(110)単結晶($5 \text{ mm} \times 5 \text{ mm} \times 0.35 \text{ mm}^3$)を使用した。入射 X 線のエネルギーは、XAFS 振動および蛍光 X 線の二次励起の影響を避けるために As の K 吸収端(11867 eV)より 100 eV、5 eV 低エネルギー側に設定した。入射 X 線のビームサイズは 4 象限スリットで縦 0.5 mm 横 0.3 mm に

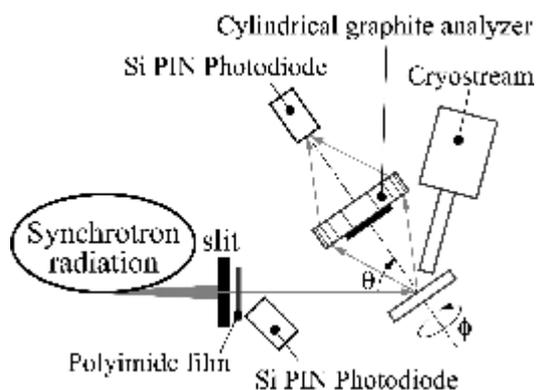


図2 実験配置.

し、ポリイミドフィルムを X 線が透過する際に発生する散乱 X 線の強度を Si PIN photodiode にて測定し I_0 強度をモニターした。試料から発する Ga の K_α 線は分光した後 Si PIN photodiode にて検出した。

結果および考察: 図 3(a)に $\theta = 35^\circ$ におけるホログラムを示す。また、比較のために半径 100 \AA の GaAs クラスタを仮定して計算したホログラムを図 3(b)に示す。実験結果とシミュレーション結果を比較すると波形の細かい形状および絶対値は完全に一致はしていない。これは、シミュレーションにおけるクラスタサイズの制約によるものである。しかしながら、両者は傾向としては同じである。図 3 中の A および D の位置では 11862 eV の $\chi(\phi)$ の値が 11767 eV のそれを上回っているのに対し、B および E の位置ではその逆になっている。また C の位置では 2 つのエネルギーでほぼ等しくなっている。これより、今回の測定で As の異常散乱によるホログラムの変化を観測できたと言える。[1]

結論および今後の予定: 試料冷却システム、円筒状グラファイトを備えた改良型ホログラフィー装置により、As の異常散乱の寄与によるホログラムの 2×10^{-4} 程度の変化を観測することに成功した。今後は吸収端より高エネルギー側の入射エネルギーの実験で問題となる XAFS 振動、蛍光 X 線の二次励起の影響を解析的に取り除く方法を検討することにより、CXH 法を実験的に成

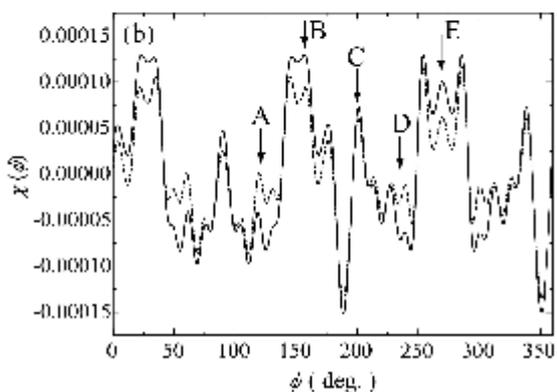
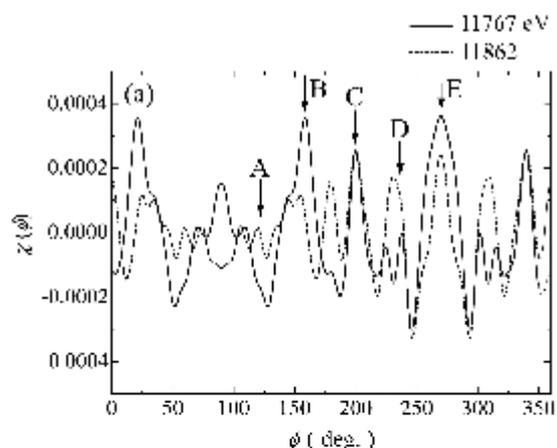


図3 $\theta = 35^\circ$ におけるホログラム。
(a)実験結果。(b)シミュレーション。

功させることを目指す。

参考文献

- 1) K. Hayashi, M. Matsui, Y. Awakura, T. Kaneyoshi, H. Tanida and M. Ishii, Phys. Rev. B **63**(2000), 410201-1.
- 2) J. J. Barton, Phys. Rev. Lett. **67**(1991), 3106.
- 3) Y. Nishino, T. Ishikawa, K. Hayashi, Y. Takahashi and E. Matsubara, Phys. Rev. B **66**(2002), 092105-1.
- 4) Y. Takahashi, K. Hayashi and E. Matsubara, Phys. Rev. B (in press).

研究成果

- [1] Y. Takahashi, K. Hayashi and E. Matsubara, Sci. Technol. Adv. Mater. (to be submitted).