

研究種目：基盤研究(B)
研究期間：2006～2009
課題番号：18360300
研究課題名(和文) 局所領域三次元原子構造解析のための電子線励起 X 線ホログラフィーの開発
研究課題名(英文) Development of electron excited X-ray holography for micro-area 3D atomic structure analysis
研究代表者 林 好一 (Hayashi kouichi)
東北大学・金属材料研究所・准教授
研究者番号：20283632

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学・金属物性

キーワード：ホログラフィー、電子顕微鏡、3次元原子像、局所構造、結晶構造

1. 研究計画の概要

電子線を試料に照射し、試料の方位を変えながら、特性 X 線の強度変化を測定することにより、特定元素周辺の原子分解能ホログラムを記録することができる電子線励起 X 線ホログラフィーを新たに提案した。本手法は、表面構造観察に用いられる X 線光電子ホログラフィーの光学的相反定理を利用した技術であるが、X 線ではなく電子線を励起源としている。電子線は、エネルギー可変性やビームの収束性に優れており、ナノメートルサイズの微結晶粒の多波長ホログラムの測定が原理的には可能である。従って、最低数 nm^2 の面積の結晶サイズを必要としていた従来の原子分解能ホログラフィー技術に比べ、格段に測定対象が広がり、かつ高精度な原子像を再生させることが可能である。本計画では、電子線励起 X 線ホログラフィー装置のプロトタイプを開発し、産業・学術界への普及を目指す。

2. 研究の進捗状況

電子線励起 X 線ホログラフィーに関する予備実験として、市販の走査電子顕微鏡 (JSM-6500F) と半導体検出器 (EX-2300BU) を用いて、6keV の加速電圧条件下で、SrTiO₃ (Nb ドープ) 単結晶から放出される特性 X 線 (Sr L \cdot , Ti K \cdot , O K \cdot) の強度の角度変化を測定した。そのデータがホログラムを仮定した理論的な計算と一致し、かつ、フーリエ変換により、若干ぼやけてはいるが、Sr 及び Ti の原子像を再生できることを示した。この結果は、初めて電子線励起 X 線ホログラフィーの原理が正しいことを世に証明した成果である。また、従来のフーリエ変換と異なるフ

ィッティングベースの原子像再生アルゴリズムを開発しており、これを用いれば多波長のホログラム測定を行わなくとも、精度よく原子像を再生できることが分かった。

特性 X 線の検出下限を向上させるために、従来、用いてきた半導体検出器ではなく、分光結晶を用いた特性 X 線検出システムを考案した。ここでは、シリコンやゲルマニウムウエハーを高度に成型加工できる高温加圧成型法を用いて、円筒状ゲルマニウム結晶を作製し、その分光特性の評価を行った。ウエハー (110) はサイズ 38mm \cdot のものを用い、曲率半径 50mm の円筒状結晶の高精度加工を行った。5種類の元素を含む合金から発生される特性 X 線をイメージングプレートの異なる場所に結像させ、作製した円筒状結晶と本検出システムの評価を行った。得られた像は、各々の元素の K \cdot 線が、K \cdot ₁, K \cdot ₂ に明瞭に分離しており、これにより変換された蛍光 X 線スペクトルはエネルギー分解能 13eV に達することも判明した。このエネルギー分解能は、通常の (走査型の) 波長分散方式のものと比べ全く遜色はない。また、同様の実験配置で通常の平板分光結晶を使った場合に比べ、その強度は 100 倍を越すことがわかり、その集光効率の高さも証明された。

3. 現在までの達成度

②おおむね順調に進展している。

(理由)

電子線励起 X 線ホログラフィーの実行可能性に関して、初めて、実験的に立証したことは、大きな意義があると思われる。また、試作した非走査方式の波長分散特性 X 線検出システムは、想定していたよりも性能が良かった。

た。一方で、多波長のホログラム測定による原子像の精密化など、未達成の部分もある。

4. 今後の研究の推進方策

(1) 測定した多波長ホログラムから、フィッティングベースの原子像再生アルゴリズムである SPEA-MEM を用いて、原子像の精度が、どれだけ向上するかを評価する。

(2) 本研究は、走査電子顕微鏡を用いて行われてきたが、新たに RHEED 用の電子銃を用い、より大電流の電子ビームを比較的大きな面積に照射することにより、短時間で微量元素のホログラムパターンを測定するための装置の開発を進める。

(3) 理論計算を用いたパターン形成メカニズムの解明を行う。主要なホログラムパターン形成に関わる物理現象に加え、周辺の物理現象の詳細なメカニズムを解明する。

5. 代表的な研究成果

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 5 件) 全て査読有り

① T. Matsushita, F. Z. Guo, M. Suzuki, F. Matsui, H. Daimon, K. Hayashi, Reconstruction algorithm for atomic-resolution holography using translational symmetry, Phys. Rev. B 78 (2008) 144111.

② K. Hayashi, K. Nakajima, K. Fujiwara and S. Nishikata, Wave-dispersive x-ray spectrometer for simultaneous acquisition of several characteristic lines based on strongly and accurately shaped Ge crystal, Rev. Sci. Instrum. 79 (2008) 033110.

③ K. Hayashi, T. Hayashi, T. Shishido, E. Matsubara, H. Makino, T. Yao, and T. Matsushita, Application of x-ray excited optical luminescence to x-ray standing wave method and atomic resolution holography, Phys. Rev. B 76, 014119 (2007).

④ S. Hosokawa, T. Ozaki, K. Hayashi, N. Happo, M. Fujiwara, K. Horii, P. Fons, A. V. Kolobov, J. Tominaga, Existence of tetrahedral site symmetry about Ge atoms in a single-crystal film of Ge₂Sb₂Te₅ found by x-ray fluorescence holography, Appl. Phys. Letters 90 (2007) 1361913.

⑤ K. Hayashi, T. Matsushita and E. Matsubara, Holographic Analysis of Incident Electron Beam Angular Distribution of Characteristic X-Rays: Internal Detector Electron Holography, J. Phys. Soc. Jpn. 75 (2006) 053601.

[学会発表] (計 3 件)

① W. Hu, 林 好一, 山本篤史郎, 八方直久, 細川伸也, 寺井智之, 福田 隆, 掛下知行, H. Xie, T. Xiao, X-ray fluorescence holography study of Ti₅₀Ni₄₄Fe₆ single crystal, 日本金属学会 (2008 年 9 月 23 日、熊本大学、熊本)

② W. Hu, K. Hayashi, N. Happo, S. Hosokawa, T. Terai, T. Fukuda, T. Kakeshita, H. Xie, T. Xiao, X-ray fluorescence holography of Ti-Ni-Fe alloy single crystal, IUCr2008 (2008. 3. 27, Osaka)

③ 林 好一, 松下智裕, 松原英一郎, 逆光電子ホログラフイー, 日本物理学会 (2006 年 3 月 30 日、愛媛大学、松島)

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 1 件)

名称: 非走査型波長分散型 X 線分析装置及びそれを用いた測定装置

発明者: 林 好一、中嶋一雄

権利者: 東北大学

種類: 特願

番号: 2007-015569 号

出願年月日: 2007 年 1 月 25 日

国内外の別: 国内

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ

<http://www.xraylab.imr.tohoku.ac.jp/member/hayashi/>