

Ge における X 線の多重ボールマン効果

梅野正隆*

完全結晶の X 線回折現象及び回折理論の研究は 1960 年前後から盛んに行なわれてきた。これは戦後結晶作製の技術が向上して各種の良質の結晶が比較的容易に入手出来る様になったことによっている。これらの研究に伴う X 線トポグラフィーの技術向上は近年の半導体デバイスの目覚ましい発展にも大きく寄与しているものと思われる。

ここで取上げたボールマン効果は異常透過現象とも呼ばれ、この完全結晶の X 線回折の流行の導火線の役目を果たしたものである。通常のコモジット結晶で X 線が回折されると、X 線の進行方向では回折された分だけ強度が弱まるためフィルム上では白く抜け上ったコントラストが得られる。一方回折ビームの方向では background に対し回折ビームの強度が付加されるため黒いコントラストが得られる。ところが結晶が完全であり X 線の吸収がある場合にはこれと異なり、入射 X 線の進行方向でも強度は回折を生じない場所に比べて強くなり、回折線も透過線もほぼ同じ強度の黒いコントラストを与える現象が生じる。即ち回折が生じる場合には X 線の異常透過が生じることになる。この現象が発見者の名前を冠して Borrmann effect と呼ばれるものであり、これが生じるわけは動力学回折理論により完全に説明されている。X 線は結晶の原子配列の間隔と同程度の波長を持った電磁波である故、X 線と結晶の相互作用を考えるには結晶を格子周期で誘電率が変化する物体と考えねばならない。周期的に変化する誘電率の場の中で存在する電磁波は単なる平面波ではなく、振巾が格子周期で変調された Bloch-type の波であることが結論される。或る結晶面で入

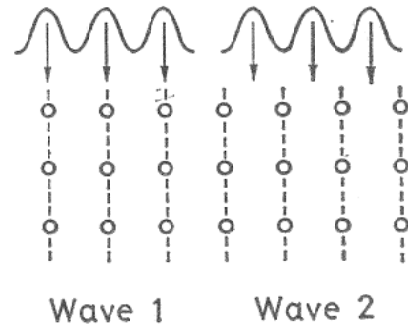


図1 結晶中に励起される二種の波

射 X 線が回折される場合、結晶中には図 1 に示した二つの型の波が励起され、夫々結晶面に沿って進行する。第 1 の波は原子の列の位置で強度が最大になるのに対し、第 2 の波は原子列の間に最大値がある。原子による X 線の吸収は原子の中心に近い程著しいので、第 1 の波はすぐ吸収されてしまうのに対し、第 2 の波は吸収されずによく透過する。この第 2 の波がボールマン効果を起こすわけである。二つの波の線吸収係数を式で表わせば、平均の線吸収係数を μ_0 とすると

$$\mu^{(1), (2)} = \mu_0 (1 \pm \epsilon)$$

となる。複号は+が第 1 の波、-が第 2 の波に対応する。 ϵ は結晶面によって異なる 1 より僅かに小さい値である。従って $\mu^{(2)}$ は通常吸収係数の 1/20 程度にも小さくなり異常透過の原因となる。このような異常透過は結晶が完全であることにより生じるものである故、結晶中に転位等の欠陥があればその場所で異常透過は生じない。この性質を利用して厚い結晶や吸収の大きい結晶のトポグラフィーが行なわれている。

ところで入射 X 線が二つ以上の結晶面で同時に回折条件を満足する場合には問題が複雑になる。この様な場合には結晶中に励起される波の数が多くなるので多波 case と呼び、先の単純な

*梅野正隆 (Masataka UMENO), 大阪大学, 工学部, 精密工学科, 川辺研究室, 助教授, 工学博士, 回折結晶学

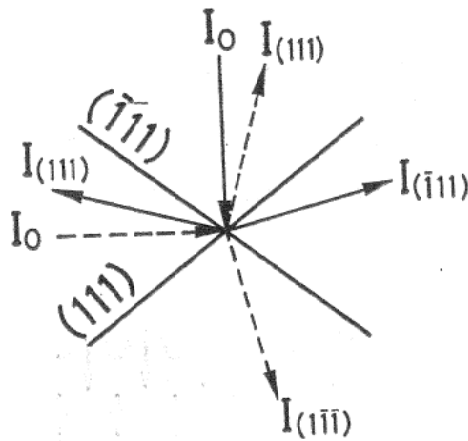


図2 {111}面による同時反射. Case A: 実線 Case B: 破線

回折の場合を2波 case と呼ばれる. 多波の場合には2波の様な一般的法則はなく, 夫々の場合に応じて動力学回折理論に基づいた方程式を解かねばならない. 次に例として Ge の二つの {111} 面による同時反射の場合について述べる. これには次の二つの場合が考えられる.

Case A: (111) と $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ の同時反射. Case B: (111) と $(1\bar{1}\bar{1})$ の同時反射. これらは図2に実線及び破線で示した場合に対応し互に complementary な関係にある. Borrmann 等は Case A の場合について異常透過強度を測定した結果 {111} による2波の場合より強い異常透過が生じる (即ち吸収係数が更に小さくなる) ことを見つけた. 測定された線吸収係数は Cu K_{α} に対し 45cm^{-1} となり $\mu_0 = 353\text{cm}^{-1}$, $\mu^{(2)} = 105\text{cm}^{-1}$ に較べて小さな値となっている. この現象は enhanced anomalous transmission (以下 EAT) 或いは double Borrmann effect と呼ばれ多くの理論計算がなされた. それによれば $\mu^{(2)}_{(111)(\bar{1}\bar{1}\bar{1})} = 19\text{cm}^{-1}$ となり実験値の半分以下の値となっている. この差は理論値が入射 X 線が厳密に同時反射の条件を満足する場合に得られたものであるのに対し, 実験では入射 beam に角度巾があり同時反射に近い入射条件のものも含まれることによる. この様に考えて広い角度範囲についての積分強度を計算し, それより求めた effective な線吸収係数は結晶の厚さと共に減少して理論値に近づくと言

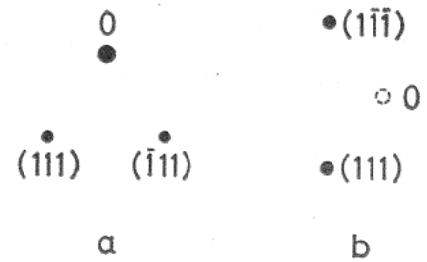


図3 二つの EAT 回折強度斑点. (a) Case A (b) Case B

う結果が得られ, 実験結果をうまく説明することが出来た. また, この場合の透過波と回折波の強度比は結晶が厚くなると図3(a)に示した様に $I_0 : I_{(111)} : I_{(\bar{1}\bar{1}\bar{1})} = 2 : 1 : 1$ に近づくことが実験より知られていたが, これも積分強度の計算と良い一致を示した. 一方 Case B の場合には強度比が図3(b)に示したように $I_0 : I_{(\bar{1}\bar{1}\bar{1})} : I_{(111)} = 0 : 1 : 1$ になることが実験的に認められた. この場合には, 同時反射の条件で励起される波の最小の線吸収係数は2波のものと殆ど同じ値となりきわだった EAT は生じないことになる. 実験では回折波方向にのみ EAT が観測されたが, これは同時反射点では励起されないがその近傍で僅かに励起されるもう一つの波により生じることが Case A の場合と同様の積分強度の計算により理解された. この場合の線吸収係数は結晶の厚さと共に 14.4cm^{-1} に漸近することが分った.

以上は多重ボールマン効果の最も簡単な例を紹介したわけであるが, 4波や6波の様に複雑な場合には更に顕著な多波効果が生じ, 吸収係数が殆ど0になる場合もある. この様な多重ボールマン効果は2波の場合の異常透過が結晶面に平行な sheet 状に進行する強度分布によって生じるのに対して pencil 状となって進行する強度分布により起こるので幾つかの利用が考えられる. 第1は透過波がレーザービームの様に X 線の進行方向に垂直なあらゆる方向に対して角度の拡がりがないことで, 可視光に較べて回折による拡がりが生じないため, リソグラフィや精密計測への応用が可能である. 次にこの現象は2波の場合よりも更に結晶の乱れに敏

感であるためトポグラフィーに応用すれば通常の方法では観測できないような微小格子欠陥の観測も可能となる。このことは超 LSI の開発等益々細密化してゆきつつある半導体デバイスと結晶中の微小析出との関係等今後の諸問題に対して一つの解決法を与えるものと考えられる。又、X線は pencil 状となって結晶中の原子の“井戸”を進むので、その通路の途中に不純物原子があれば、散乱されたり吸収されたりするため、透過強度が減少する。従って幾つかの結晶面の組合せによる多重ポールマン効果を調べることにより結晶格子中の不純物原子の位置を決定することが出来る。

現在の問題点はX線の強度がこれらの応用実験が行なえる程強くないことである。強力X線

の必要性はX線を利用しているあらゆる分野で叫ばれており、この様な要求から回転対陰極X線発生装置の大型化や、シンクロトロン或いはストレージリングからの軌道輻射 (SOR) の利用等が進められている。殊に後者は通常のX線管より広い波長範囲に亘って3桁程度も強いX線が得られるため、現在世界的にSORの利用のための専用装置が建設されつつある。我国でもフォトンファリトリー計画として建設も軌道に乗ってきたので近い将来に多重ポールマン効果の研究も新しい局面を迎えるものと思われる。

以上、ここ数年来進めてきた研究の概要と今後の展望について簡単に紹介した。