

その場放射光 X 線回折による結晶成長研究の進展

Progress in in situ synchrotron X-ray diffraction study of crystal growth

量研 ○高橋 正光

QST ○Masamitsu Takahasi

E-mail: takahashi.masamitsu@qst.go.jp

【背景】 原子・分子レベルの素過程からマクロな秩序構造が形成される結晶成長は、本質的にマルチスケールな現象である。そのような現象を理解するにあたって、原子間距離と同程度以下の波長と、数ミクロン以上の空間コヒーレンス長を持つシンクロトロン X 線は、ミクロからマクロな構造スケールを連続的にカバーできるすぐれたプローブである。シンクロトロン放射光は、基礎研究から産業分野の研究開発まですでに広く使われているが、結晶成長のその場測定にもその利点は発揮され、国内外で多くの研究がおこなわれている。

【結晶成長中のその場 X 線回折の現状】 我々は、放射光施設 SPring-8 において、窒化物を含む III-V 族半導体分子線エピタキシー (MBE) を備えた X 線回折装置を製作し、結晶成長中のその場測定によって、原子レベルでの結晶成長機構の解明に取り組んできた [1-4]。成長条件下でその場測定をすることは、

- (1) 成長量を系統的に変化させた試料に対する一連の測定データを一回の実験で得ることができる
- (2) 酸化などによる構造変化が懸念される成長初期過程や極薄膜領域から測定対象にできる
- (3) ヘテロエピタキシーの場合にしばしば問題となる基板と成長膜との熱膨張係数の違いに起因する熱ひずみの影響を避けることができる

など、多くの利点がある。MBE については、ドイツの放射光施設 BESSY で、Paul-Drude 研究所のグループによって、我々と非常によく似た装置が同時期に製作され、利用されている。最近では、ドイツのカールスルーエ研究所のグループがコンパクトなその場 X 線回折測定用の III-V 族半導体 MBE を製作し、いろいろな放射光施設に持ち込んでその場測定をおこなっている。X 線は透過力が高いので、超高真空中での結晶成長ばかりでなく、大気圧に近い材料ガス雰囲気中で成長がおこなわれる有機金属化学気相成長 (MOCVD) や、水溶液中での電気化学めっき、液相成長などへの応用もおこなわれている。

【今後の展開】 2000 年以降、世界的に、光源サイズの小さな高輝度放射光源の開発が盛んに進められている。結晶成長のその場 X 線回折の観点からも、これら高輝度放射光源への期待は大きい。第一に、現状での典型的な放射光 X 線のビームサイズが試料位置で 0.1mm 程度であるのに対し、光源サイズが小さくなれば、適切な X 線集光光学系を使用することによって、ナノサイズの X 線を作ることができるようになる。このような集光 X 線は、ナノ構造はもちろんのこと、欠陥など不均一性を含む試料の評価に有力な手法となる。第二に、空間的にコヒーレントな X 線を利用することによって、X 線光子相関分光などを用いた結晶成長ダイナミクス研究の可能性が生まれる。このような高輝度放射光源の可能性を結晶成長研究に活かしていくためには、新しい測定手法の開発とともに、試料および光学系の安定性を高める工夫も必要になると考えられる。

[1] M. Takahasi, Y. Yoneda, H. Inoue, N. Yamamoto, J. Mizuki, Jpn. J. Appl. Phys. **41**, 6247 (2002).

[2] M. Takahasi, J. Phys. Soc. Jpn. **82**, 021011 (2013).

[3] T. Sasaki, F. Ishikawa, T. Yamaguchi and M. Takahasi, Jpn. J. Appl. Phys. **55**, 05FB05 (2016).

[4] M. Takahasi, Jpn. J. Appl. Phys. **57**, 050101 (2018).