

X線断層写真を用いた格子欠陥の三次元再構成

Three-dimensional reconstruction of defect images using limited projection topographs

水野 薫^{1*}, 岡本博之²¹ 島根大学総合理工学部 〒690-8504 松江市西川津町 1060² 金沢大学医薬保健研究域 〒920-0942 金沢市小立野 5-11-80

1 はじめに

ダイヤモンドは物質中で最も硬く、熱伝導率が高いなどの特性を持つため、高精度の切削工具やヒートシンク材料などで利用され始めている。しかし、これまでは育成条件が高圧、高温のような極限条件であったため大型結晶の合成法が確立されておらず、天然産ダイヤモンドに頼るところが多かった。近年、合成技術の発達により増産が可能となり、人工ダイヤモンドの比率が増してきている。[1]

しかしながら、結晶の強度や特性を左右する欠陥と育成条件の関係については、未だ未解明な部分も多く、さらなる良質な結晶を育成する際の障害となっている。また結晶中に欠陥が存在することは理想的な結晶から予想される物性と、実測で得られる結果の間にずれが生じることを意味する。つまり、実際の結晶においては、本来期待される強度や熱伝導特性を示さず、使用上の制約となることがある。そのような経緯から、できるだけ欠陥の少ない結晶を育成する技術が求められている。そのためには、結晶の育成過程における、格子欠陥の生成や消滅の機構について、詳細な研究を行うことが必要と考えられている。

そこで、将来的に有望な材料である人工合成ダイヤモンドについて、X線3次元トポグラフィ法を用いて観察し、格子欠陥の3次元的配置とその種類の同定を試みた。また、その結果から結晶の育成過程における条件のゆらぎなどの検討も試みた。

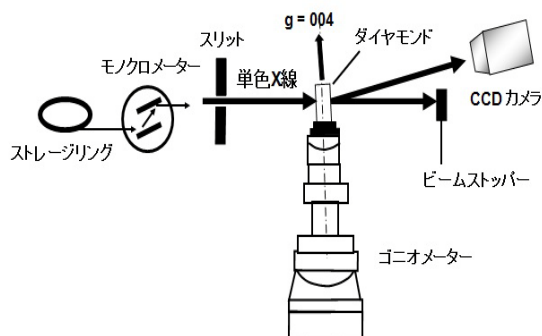


図1. 三次元トポグラフィカメラ

2 実験

今回の実験では、結晶中に存在する欠陥の分布と形状を確認することが重要であるため、3次元トポグラフィ法を用いた。[2, 3]

実験は九州シンクロトロン光研究センターの県有ビームラインBL09とKEK-PFのBL-15Bを用いて行った。その際の、実験配置の概略を、図1に示す。スリットを用いて単色X線ビーム(波長0.0815nm)の上下幅を絞り横長のリボン状ビームにして結晶に入射し、特定の回折面を用いて回折させて撮影を行った。この撮影方法はセクショントポグラフィ法と同様であり、結晶の照射部分の断層像が得られる。この撮影を、厳密に回折条件を保ったまま、試料を鉛直方向に移動しながら繰り返す。得られた数百枚の断層写真を、パーソナルコンピュータ上で画像処理ソフトを用いて3次元像に構築した。

試料にはHPHT法合成した人工ダイヤモンド単結晶(住友電工製スミクリスタル, タイプI b)を用いた。サイズは $2 \times 2 \times 1.5 \text{ mm}^3$ 程度で、その外形は図2のような面方位をもっている。

3 結果および考察

図3はBL09において(004)を回折面とし、構築した三次元トポグラフィ像を、(110)面に平行に切断した像である。図の上下の辺は(001)面に相当する。まず、図中に実線①, ②で示すような2種類の面状欠陥が観察された。実線②は(001)面に対して約 64° をなすため、この面状欠陥は(33-2)面上に存在して

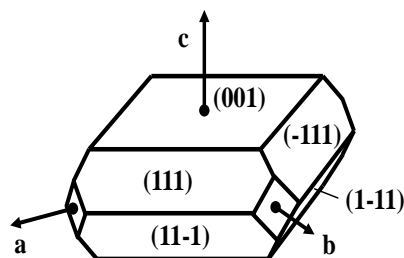


図2. 合成ダイヤモンド試料の方位

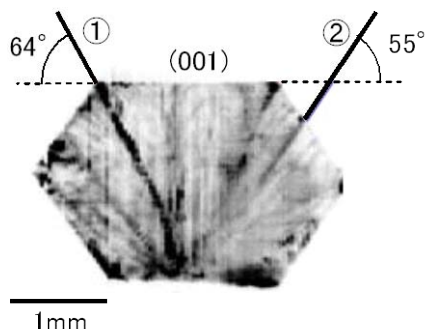


図 3. (004)を回折面として再構成した三次元トポグラフの(110)面の断面

いると考えられる。実線①は(001)面に対して約 55° をなすため、欠陥は(111)面上に存在していると思われる。この結果から、まず②の欠陥について調べるため、(004)回折面の3次元トポグラフ像を(22-3)面で切断し観察した。すると、図4のような、いびつな欠陥像を観察できた。その欠陥像は図4下部の種結晶部から、上部の(001)と(111)のエッジ部に向かって延びていた。さらに水平方向に、ステップ状の模様も観察できた。これらのことから、②の面状欠陥は結晶の成長過程において条件が揺らいだことによる、成長痕ではないかと考えられる。ステップ状に見える部分において、成長速度の変化が生じ、溶媒金属がインクルージョンとして含まれた可能性が有ると考える。

次に、①の面状欠陥は面心立方構造の最密面である(111)面上に存在するため、積層欠陥の可能性を疑った。そこで、{111}面で3次元トポグラフ像を撮影し、欠陥像の回折面依存性を検討した。回折面を(1-11)とした3次元トポグラフを撮影し、(111)面で切断し観察すると図5に示すような面欠陥であることが分かった。しかし回折面を(111)とした3次元トポグラフ像から、図5と同じ位置で切断し観察すると、このような面欠陥像は見られなかった(図6)。他の{111}回折面についても同様に、回折面に平行に存在する面欠陥は観察されずに、それ以外の欠陥は観察できた。これらの結果から、この面欠陥は積層欠陥であると考えられる。

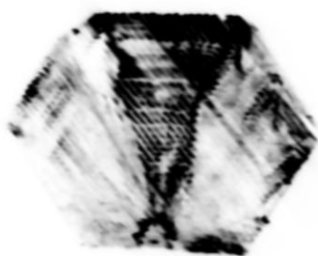


図 4. (004)を回折面として再構成した三次元トポグラフの(22-3)面の断面

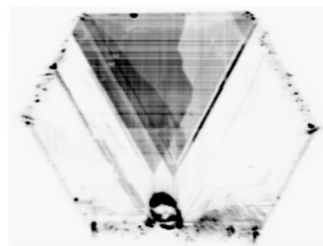


図 5. (-111)を回折面として再構成した三次元トポグラフの(1-11)面の断面



図 6. (1-11)を回折面として再構成した三次元トポグラフの(1-11)面の断面

4 まとめ

人工合成ダイヤモンドについて、X線3次元トポグラフ法を用いた観察を行い、格子欠陥の3次元的な配置とその種類の同定を試みた。その結果、結晶の成長過程での成長条件のゆらぎにより生じた成長痕と積層欠陥と思われる面状欠陥を同定できた。

謝辞

九州シンクロトロン光研究センターにおける実験に際して石地耕太郎博士および川戸清爾博士にご協力いただいた。ここに感謝致します。

参考文献

- [1] 角谷均, 日本結晶成長学会誌 **38** (2011)281.
- [2] S.kawado and J. Aoyama: Appl. Phys. Let. **34**(1979) 428.
- [3] Kajiwara et al., Phys. Stat. Sol. **204**(2007)2682.

* mizuno@riko.shimane-u.ac.jp