

X線干渉を利用した原子像の再構成

東大物性研

高橋敏男、隅谷和嗣、草野修治

一般に、X線などの回折散乱実験では、強度を測定するために回折散乱波のもつ位相情報は失われてしまう。もし、それらの位相情報を求めることができれば、X線回折散乱の実験データをフーリエ変換することにより電子密度分布あるいは原子位置を求めることができる。したがって、構造モデルを仮定することなく実験データから直接的に構造が求められることになる。10年以上前から研究の進められている光電子などのホログラフィ[1-3]は、そのようなことのできる方法の1つのである。ここでは、表面X線回折法で得られたデータから表面原子を3次的に再構成する試み[4]を紹介するとともに、蛍光X線を利用した原子分解能をもつホログラフィ[5,6]を用いて得られた結果についても触れる。

1) CTR散乱による表面界面原子の3次元電子密度分布

最近、我々は表面X線回折におけるCTR散乱をホログラフィの観点から解釈を試みた。図1に示すように、CTR散乱は、構造の既知である基板結晶からの散乱波と未知の表面構造からの散乱波の干渉としてその振幅は与えられる。ここで、既知である基板結晶からの散乱波は、計算によりその波の位相も振幅の絶対値も知ることができるので、これを参照波と見なすことができる。したがって、光電子ホログラフィで知られているのと同じようなフーリエ変換の手続きにより、表面原子像をモデルを仮定することなく3次的に再構成できることになる。しかも、この方法では、参照波として計算値を用いることができるので、参照波の強度ではなく振幅でデータを規格化できる。このため、原理的には再構成された像には電子密度分布の情報が含まれる。

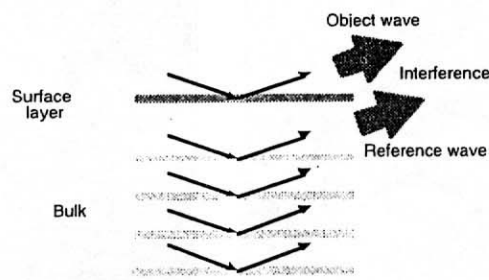


図1：CTR散乱

X線回折法では、通常、適当な構造モデルを仮定して回折強度を計算し、実験結果と比較して両者の一致がよくなるまで適当な構造モデルを試すことになる。このため、この方法で初期構造モデルを絞り込むことができれば、その先は従来通りの方法を利用して構造の精密化を行うことができる。

図2は、この方法でシュミレーションにより得られた結果である。単純立方構造の結晶表面に1×1構造ができていると仮定した計算した。この方法では、基板結晶と表面

原子が同じ場合でも利用できる。原理的には、軽原子が表面構造を形成している場合でも有効である。

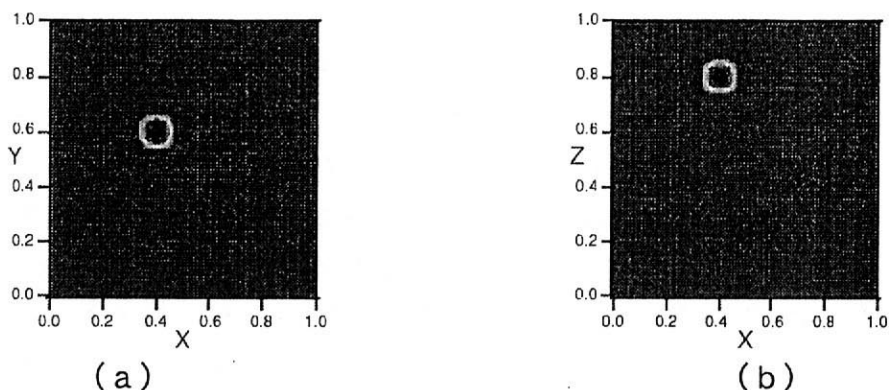


図2：1x1構造をとる表面原子像のシミュレーション。(a)平面図、矩形の大きさは2次元単位格子。(b)側面図。

図3は、a-Si/Ge(1ML)/Si(001)を用いてCTR散乱の実験を行い、得られた結果をフーリエ変換して求めた像である[7]。Ge原子がSi原子と置換するように入っていること、さらにはSiのときよりも少し結合距離が長い位置を占めることも分かる。この測定では、逆格子点付近のみの測定を行ったので、ここで得られた結果を初期値として精密化を行うことは困難であるが、さらに逆格子点からも遠い点の測定も行えば精密化も可能である。

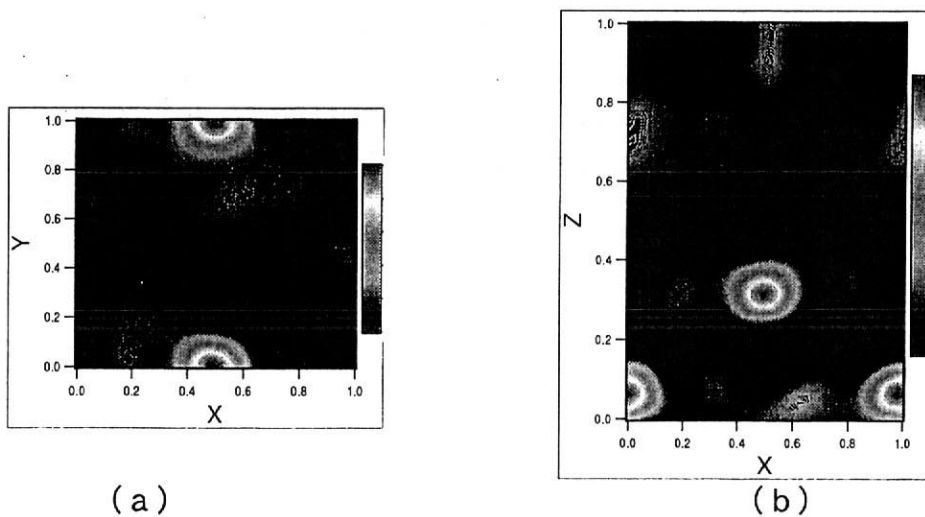


図3：a-Si/Ge(1ML)/Si(001)のCTR散乱強度から再構成されたGe原子像。(a)平面図、矩形の大きさは2次元単位格子。(b)側面図。

2) 純粋な蛍光X線ホログラフィ

蛍光X線ホログラフィには、よく知られているように互いに相反定理で関係づけられる2つの方法がある[5,6]。しかし実際には、2つの方法で考えている散乱過程は単純に分離することはできず、一般的には2つの散乱過程は混在している。我々は、片方の

過程だけを取り出して測定することを試みた。

蛍光X線ホログラフィでは、ホログラムに相当する干渉パターンのvisibilityが極めて低く、バックグラウンドの引き方で解析結果が左右される。これまで、このような2つの過程の混在はデータ処理過程で片方を除去することでも行われてはいるが、非常に微妙な処理を行うことになる。このため測定の段階であらかじめ片方の過程を除去できれば解析における曖昧さは少なくできる。蛍光X線ホログラフィの特徴の一つであるモデルフリーに構造を決定するという観点からもこのことは重要である。

我々は、まずGeの単結晶を用いてそのような実験を行い装置の性能を評価した。一つの波長による測定でも分解能は0.1Å以下であることと同時にGeの格子定数5.65Åに良く一致する結果が得られた。次に、Si単結晶にGe量子ドットを成長させた後にSiでキャップした試料について測定を行った。図は、4つの波長で測定した結果から再構成された結果である。量子ドット内のGeについては、単結晶の5.65Åとは明らかに異なる値5.51Åを得た。

References

- [1] A. Szoke, A.I.P. Conference Proceedings 147 (1987) 361.
- [2] G. R. Harp, D. K. Saldin and B. P. Tonner, Phys. Rev. Lett. 65 (1990) 1012
- [3] C. S. Fadley, Surf. Sci. Rep. 19(1993) 231.
- [4] T. Takahashi, K. Sumitani and S. Kusano, Surf. Sci.
- [5] M. Tegze and G. Faigel, Nature 380 (1996) 49.
- [6] T. Gog et al., Phys. Rev. Lett. 76(1996) 3132.
- [7] K. Sumitani, T. Takahashi, S. Nakatani, A. Nojima, O. Sakata and Y. Yoda, S. Koh, T. Irisawa, and Y. Shiraki, to be submitted to Jpn. J. Appl. Phys.
- [8] S. Kusano, S. Nakatani, K. Sumitani, T. Takahashi, Y. Yoda, N. Usami, Y. Shiraki, to be submitted.