

4 軸 X 線回折測定による超伝導薄膜配向性の 3D 表示プログラムの作成

大竹 佑樹¹, 内山 哲治²

¹ 宮城教育大学大学院 教科教育専攻 理科教育専修

² 宮城教育大学 教育学部 理科教育講座

本研究室では、超伝導薄膜の作製を行っている。作製された超伝導薄膜の結晶構造は、4 軸 X 線回折装置により評価された。X 線回折測定の結果は、付属のソフトウェアにより表示可能であるが、3 次元 (3D) 的に表示させることが出来ないため、視覚的に分かりにくいという問題があった。そこで我々は、LabVIEW を用いて、X 線回折測定結果を 3D 表示させるプログラムを作成した。LabVIEW は、世界中の理工系分野で用いられている計測・制御用ソフトウェアであり、視覚的にプログラムを構築することが出来るため、短期間で実用的なソフトウェアの開発が可能である。本論文では、X 線回折測定結果を視覚的に分かりやすく 3D 表示させるプログラム以外に 2D 表示で結晶構造を解析するプログラムも作成したので、合わせて報告する。

キーワード：超伝導薄膜、X 線回折、極図形、面内配向角、LabVIEW

1. 背景と研究目的

我々は、高温超伝導薄膜のエレクトロニクス応用を目指し、 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ (BSCCO) 薄膜の作製を行っている。BSCCO 薄膜は、構成元素を MgO 基板上にエピタキシャル成長させることで作製される。エピタキシャル成長とは、薄膜結晶成長技術の 1 つであり、下地の基板の結晶面に揃えて、目的の結晶を配列させる結晶成長法である。MgO 基板は誘電率 ($\epsilon \sim 10$) が低く、高周波応用に適しているが、BSCCO 薄膜に対しては ab 面での格子不整合性が非常に大きい (28.6%)。したがって、MgO (100) 基板上に成膜した BSCCO 薄膜は、複数の面内配向角 η (MgO 基板の a 軸と BSCCO 薄膜の a 軸が成す角) を混在して持つことが知られており、 $\eta = 0^\circ$ の配向、 $\eta = 45^\circ$ の配向、 $\eta \sim \pm 12^\circ$ の配向が多く報告されている。したがって作製した BSCCO 薄

膜は、X 線回折装置により極点測定などを行い、 η を調べる必要がある [1]。

本研究室で使用している X 線回折装置には、極点測定による回折データを極図形表示するソフトウェアが付属している。しかしこのソフトウェアには、極図形を 3 次元 (3D) で表示する機能がないため、視覚的に分かりにくいという問題があった。また、BSCCO 薄膜の極図形と MgO 基板の極図形を重ねて表示することが出来ないため、 η を調べることも容易ではなかった。

そこで LabVIEW により、極図形を 3D 表示させ、さらに η を調べる事が出来るプログラムの作成を試みた。

2. 極点測定

一般に材料は、微細な単結晶粒の集まりである。それらの結晶粒がある方位に偏って配向して

いる場合、集合組織を持つという。集合組織により材料の特性に異方性が現れることがあり、このような材料の異方性は物性研究に非常に有益である。そのために結晶方位の配向を決定することは重要である。極点測定は、X 線を利用した集合組織の測定法であり、結晶方位をステレオ投影図上に表現した極点図を得る測定手法である [2]。本研究では、極点測定手法の 1 つである Schulz の反射法により測定を行い、MgO 基板に対して BSCCO 薄膜がどのように配向しているのかを調べた。図 1 に Schultz の反射法の測定原理を示す。

Schulz の反射法では、Schulz スリットとよばれる 1mm 程度の水平スリットにより、上下方向の幅を制限した発散 X 線束を試料に入射させ、表面から出てくる回折 X 線の全強度を測定する。X 線源は点焦点 X 線源であり、集中法光学系を用いている。まず、調べたい試料の hkl 回折線について、回折条件を満足するように入射 X 線と回折 X 線の方向を固定する。試料は、ゴニオメータ軸に垂直な A 軸のまわりに回転 (α 回転) させた後、B 軸のまわりに 360° 回転 (β 回転)

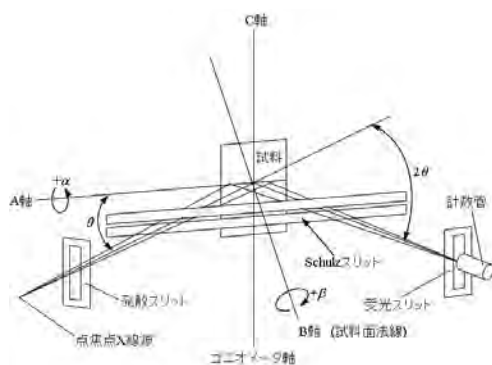


図 1 Schulz の反射法の原理図

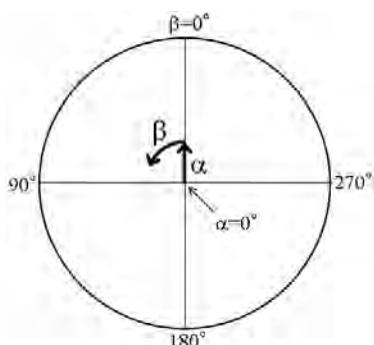


図 2 X 線回折強度のプロット (極図形)

させ、X 線回折強度を測定する。この時の各 α , β に対応する X 線回折強度をポーラーネット上にプロットすることで、極図形は描かれる (図 2) [3-4]。

3. プログラム作成における課題と解決

プログラムの構築は、LabVIEW を用いて行った。LabVIEW は、世界中の理工系分野で用いられている計測・制御用ソフトウェアである。LabVIEW の最大の特徴は、グラフィカルプログラミング言語 (G 言語) によってプログラムを構築していくところである。G 言語はテキストベースとは異なり、画面上にアイコンを配置し、アイコン同士を配線で繋ぐことで視覚的にプログラムを組み立てることが出来る。そのためプログラミングの初心者でも、短期間で実用的なソフトウェアの開発が可能である [5]。

LabVIEW を用いて極図形の 3D 表示プログラムを作成するにあたっては、測定データの読み込みに関して次のような問題があった。極点測定データは、X 線回折装置に付属のソフトウェアによりテキスト形式に変換することで、LabVIEW に読み込ませることが可能である。しかし極点測定生データは、 α 角毎のデータが縦一列に書き込まれた形式になっているため、LabVIEW では、 α 角毎にデータを区別せずに読み込んでしまう。LabVIEW に正しくデータを読み込ませるためには、Excel などの表計算ソフトを使い、あらかじめ α 角毎にデータを改列する必要がある。しかしこの手法では、測定を詳細に行い、データ数が膨大な数に及んだ場合、データの改列に大変な労力を要してしまう。そこで、測定データの整理を、表計算ソフトではなく、LabVIEW のプログラム上で実現することでこの問題を解決した。

このようにして読み込まれた極点測定データは、LabVIEW に備えられている 3D グラフ表示器で 3D 表示させた。この 3D グラフ表示器では、プロットスタイルやプロットカラーの変更はもちろん、視点を 3D で自由に变化させることが可能

である。さらに、複数のグラフを重ねて表示させることが出来たため、BSCCO 薄膜の測定データと MgO 基板の測定データを重ねて表示させることが可能であった。しかしこれには、座標軸を直交座標から極座標表示に変更する機能が備わっていない。そこで、半径の異なるいくつかの同心円を重ねた図形を作成し、これを極座標の座標軸として採用した。

4. 3D 表示プログラム

図 3 に極図形 3D 表示プログラムの操作画面を示す。①でグラフ表示器に表示させる薄膜のデータと基板のデータのファイルを選択する。ここで選択されたファイルの測定データが、②の 3D グラフ上に表示される。③では、3D グラフ表示の表示モードの設定、極座標の座標軸の設定が出来る。さらに画像取得ボタンを押すことで、3D

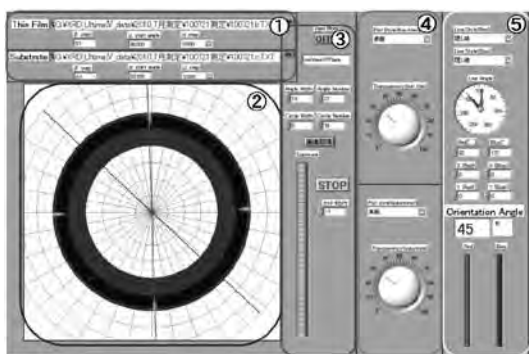


図 3 極図形 3D 表示プログラムの操作画面

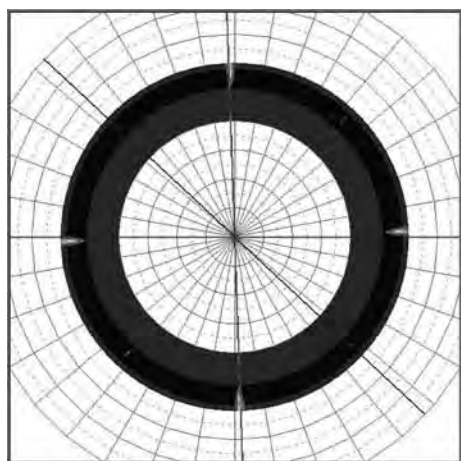


図 4 3D グラフの画像データ (XY 面)

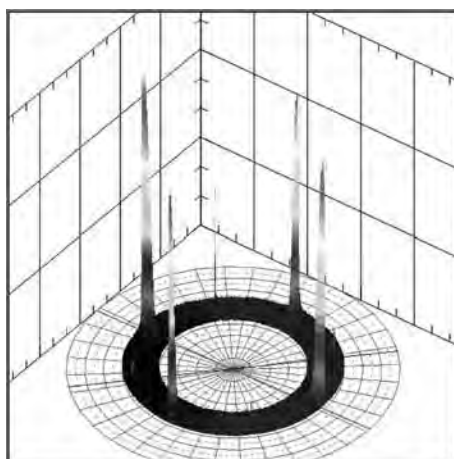


図 5 3D グラフの画像データ (ユーザー設定)

グラフに表示されている画像のデータを取得し、JPEG ファイルとして保存することが可能である (図 4, 5)。④ではプロットスタイルを設定することができ、線、点、線と点、表面、等高線などの 9 種類から選ぶことが出来る。また、グラフの透過率を変化させることも可能で、⑤では、赤の線と青の線の表示形式 (線、点、線と点、表面、等高線などの 9 種類) の選択と、赤と青の線の回転角度を変えることが出来る。この 2 本の線は、 η を調べるためのものであり、2 本の線の一方を MgO 基板のピークに合わせ、もう一方を BSCCO 薄膜のピークに合わせることで、2 本の線の成す角度が表示され、 η の大きさを調べる事が出来る。

5. 2D 表示プログラム

本研究では、極図形 3D 表示プログラムの他に、2D 表示により解析するプログラムも作成した。ここでは『XRD_peak_search』・『 ϕ scan』について報告する。

『XRD_peak_search』は、 $\theta/2\theta$ 測定による X 線回折角 (2θ) の解析プログラムである (図 6)。①で X 線の波長を入力し、②で目的の結晶の格子定数 (結晶軸の長さ、軸間角度) を入力する。BSCCO は 3 種類の安定した相があるため、本プログラムでは、3 種類の結晶の格子定数が入力出来るように作成した。格子定数及び軸間角度

をユーザー設定としたため、BSCCO のような斜方晶以外に、三斜晶などの結晶構造にも対応可能となっている。③で調べたい面のミラー指数 (hkl) を入力する。④で X 線回折のデータファイルを選択すると、XY グラフ (縦軸: 回折強度 (cps)、横軸: 回折角 2θ (cps)) 上に表示される。XY グラフ上には測定データのプロット (黄色) の他に、水色の 2 本の縦線が表示される。この 2 本の縦線は、⑤で横軸方向への移動と間隔を変えることが出来る。2 本の縦線の間にはピークが入るように、2 本の縦線の位置を移動させると、⑥にそのピークの回折角 2θ と強度が表示される。そのピークの回折角の値と、③で作成したリストの中の回折角の値を比較し、値が近い順に上位 3 つの候補が⑦に表示される。また③のリストの値と、測定値が何パーセント一致しているのかが⑧に表示され、リストの値と測定値が 99% 以上一致している場合、横の丸型表示機が LED のように点灯するようになっている。



図6 XRD_peak_search の操作部

『 ϕ scan』は、面内配向測定である ϕ スキャン測定によるデータから詳細に η を調べるためのプログラムである (図 7)。①で BSCCO 薄膜の測定データを、②で MgO 基板の測定データを選択する。ここでは、図 1 に示した回転角 α を指定することで、固定 α での β 回転に対する測定データが XY グラフ (縦軸: 回折強度 (cps)、横軸: 試料回転角 ϕ (deg.)) 上に表示される。赤のプロットが BSCCO 薄膜のデータであり、緑のプロットが MgO 基板のデータである。XY グラフ上には測定データのプロットの他に、水色と橙色の 2 本の縦線が表示される。水色の 2 本の縦

線は③で、橙色の 2 本の縦線は④で横軸方向への移動と間隔を変えることが出来る。縦線の間にはピークが入るように、縦線の位置を移動させることで、そのピークの位置 ϕ と強度が表示される。水色の縦線と橙色の縦線をそれぞれ BSCCO 薄膜と MgO 基板のピーク位置に合わせることで、ピーク位置の差が計算され、 η を調べる事が出来る。

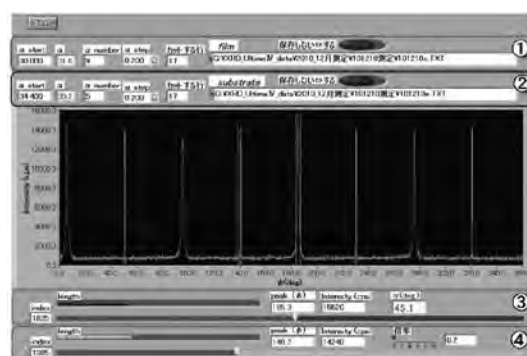


図7 ϕ scan の操作部

6. まとめ

X 線回折装置に付属のソフトウェアでは行うことが出来なかった極図形の 3D 表示を、LabVIEW を用いることで実現させた。作成したプログラムは、測定データをあらかじめ表計算ソフトなどで整理することなくそのまま読み込むことが出来るため、3D の極図形を非常に簡単に表示させることが出来る。さらに、座標軸の極座標表示、グラフ画像の取得、 η の計算などの機能も備えることが出来たため、非常に高機能な表示・解析プログラムとなった。

極図形の 3D 表示プログラムの他にも、 $\theta/2\theta$ 測定による X 線回折角の解析プログラムや、 ϕ スキャン測定のデータから η を詳しく調べるための 2D プログラムを作成した。これらのプログラムにより、X 線回折測定データを短時間で詳細に解析することが可能になった。

参考文献

- [1] Uchiyama, T. and Uchida, T.: Control of in-plane-orientation of Bi-2212 thin films prepared by MOD method, Tech. Rep. IEICE SCE, 106, pp.19-24 (2006).
- [2] 加藤誠軌: X線回折分析, pp.290-293, 内田老鶴圃(1990).
- [3] 菊田惺志: X線回折・散乱技術上, pp.9-16, 東京大学出版会(1992).
- [4] X線回折装置 Ultima IV 取扱説明書, 株式会社リガク.
- [5] Robert H. Bishop: LabVIEWTM8 プログラミングガイド, アスキーメディアワークス(2008).