

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第3664483号

(P3664483)

(45) 発行日 平成17年6月29日(2005.6.29)

(24) 登録日 平成17年4月8日(2005.4.8)

(51) Int. Cl.⁷

G01N 23/207

F I

G01N 23/207

請求項の数 3 (全 10 頁)

(21) 出願番号	特願2002-549954 (P2002-549954)	(73) 特許権者	000250339 株式会社リガク 東京都昭島市松原町3丁目9番12号
(86) (22) 出願日	平成12年12月14日(2000.12.14)	(74) 代理人	100101867 弁理士 山本 寿武
(86) 国際出願番号	PCT/JP2000/008876	(72) 発明者	横山 亮一 東京都昭島市松原町3-9-12 理学電 機株式会社内
(87) 国際公開番号	W02002/048696	(72) 発明者	表 和彦 東京都昭島市松原町3-9-12 理学電 機株式会社内
(87) 国際公開日	平成14年6月20日(2002.6.20)	(72) 発明者	遠藤 上久 東京都昭島市松原町3-9-12 理学電 機株式会社内
審査請求日	平成15年12月16日(2003.12.16)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 極点測定方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

あらかじめ与えられた試料のあおり角()に基づき、所定の原点(O)を通る所定の軸(軸)を中心に試料を回転させて試料面に対するX線の入射角()を、上記あおり角()だけ試料を傾けたときの極点測定位置に相当する所定位置へ設定するとともに、上記あおり角()に基づき、上記所定の軸(軸)と直交する第1の平面に沿って該所定の軸(軸)を中心にX線検出器を回転(2 回転)させ、かつ上記所定の軸(軸)を含み上記第1の平面と直交する第2の平面に沿って原点(O)を中心にX線検出器を回転(2 回転)させることにより、上記あおり角()だけ試料を傾けたときの極点測定位置に相当する所定位置へX線検出器を配置し、

かつ、上記あおり角()に基づき、試料の面内回転方向の測定角度に関する補正值()を算出し、あらかじめ与えられた試料の面内回転方向の測定角度()に上記補正值()を加味した面内回転方向の測定角度()を設定し、

次いで、試料面から回折してくる回折X線を上記X線検出器で検出することにより試料の極点を求める極点測定方法。

【請求項2】

所定の原点(O)を通る所定の軸(軸)を中心に試料を回転させるとともに、上記所定の軸(軸)と直交する第1の平面に沿って上記所定の軸(軸)を中心にX線検出器を回転(2 回転)させ、かつ上記所定の軸(軸)を含み上記第1の平面と直交する第2の平面に沿って原点(O)を中心にX線検出器を回転(2 回転)させ、さらに上記原

10

20

点(0)を通る所定の軸(軸)を中心に試料を面内回転させる機能を備えたX線回折装置を用いた極点測定方法であって、次の(a)乃至(d)のステップを含む極点測定方法

(a) あらかじめ与えられたあおり角()に基づき、所定の原点(0)を通る所定の軸(軸)を中心に試料を回転させて試料面に対するX線の入射角()を、上記あおり角()だけ試料を傾けたときの極点測定位置に相当する所定位置へ設定する。

(b) 上記あおり角()に基づき、上記所定の軸(軸)と直交する第1の平面に沿って該所定の軸(軸)を中心にX線検出器を回転(2 回転)させ、かつ上記所定の軸(軸)を含み上記第1の平面と直交する第2の平面に沿って原点(0)を中心にX線検出器を回転(2 回転)させることにより、上記あおり角()だけ試料を傾けたとき

10

の極点測定位置に相当する所定位置へX線検出器を配置する。

(c) 上記あおり角()に基づき、試料の面内回転方向の測定角度に関する補正值()を算出し、あらかじめ与えられた試料の面内回転方向の測定角度()に上記補正值()を加味した面内回転方向の測定角度()を設定する。

(d) 上記(a)乃至(c)のステップを行った後、試料面から回折してくる回折X線を上記X線検出器で検出することにより試料の極点を求める。

【請求項3】

請求の範囲1または2の極点測定方法において、

あらかじめ与えられた試料のあおり角()に基づき、次式をもって上記X線の入射角()、X線検出器の回転角(2 および2)および試料の面内回転方向の測定角度()

20

$$\omega = \cos^{-1} \frac{e_y \cdot (K_0'')}{|e_y| |K_0''|}$$

$$2\theta = \omega + \cos^{-1} \frac{e_x \cdot (K_1' \times e_z)}{|e_x| |K_1' \times e_z|}$$

$$2\theta_\chi = 90^\circ - \cos^{-1} \frac{e_z \cdot (K_1'')}{|e_z| |K_1''|}$$

$$\phi = \beta + \Delta\beta - 180^\circ$$

30

$$\Delta\beta = \cos^{-1} \frac{e_z \cdot (K_0 \times e_x)}{|e_z| |K_0 \times e_x|}$$

ここで、 e_x 、 e_y 、 e_z は、試料の面内回転軸(軸)をx軸、上記軸をz軸、試料面上のあおり軸に相当する軸をy軸として定義された、原点Oで交わるxyz直交座標軸の単位ベクトルであり、 χ は、あらかじめ与えられた試料の面内回転方向の測定角度である。

また、x軸周りの回転マトリクスを R_x として、

$$K_0'' = R_x () K_0'$$

$$K_1'' = R_x () K_1'$$

40

さらに、y軸周りの回転マトリクスを R_y 、z軸周りの回転マトリクスを R_z として、

$$K_0' = R_y (-) K_0$$

$$K_1' = R_y (-) K_1$$

$$K' = K_1' - K_0'$$

$$K_1 = R_z (- 2 \quad b) K_0$$

なお、 b はあらかじめ与えられた特定の反射のブラッグ角であり、 K_0 はこのブラッグ角に設定された入射X線の波数ベクトルである。

【発明の詳細な説明】

技術分野

50

本発明は、X線回折装置を用いて多結晶試料を分析するための極点測定方法に関する。

背景技術

X線回折装置を用いた多結晶試料の分析方法に、極点図をもって試料の配向（集合組織）等を分析する極点測定方法がある。極点図は、試料を構成する結晶の特定の格子面に関する極を、図6に示すようなポーラーネット（ステレオ投影図）に表したものである。ここで、極とは試料を構成する結晶を中心とする投影球（projection sphere）と格子面の法線との交点をいう。

図5は、従来の4軸X線回折装置を用いた極点測定方法を説明するための模式図である。同図に示すように、試料Sは、 ω 軸周りに ω 回転するとともに、試料面Sa内の χ 軸を中心に回転自在であり、かつ試料面Saに直交する ψ 軸を中心として面内回転する。これら ω 軸、 χ 軸、 ψ 軸は、それぞれ試料面Sa上の原点（一般に、試料中心）Oで交わっている。入射X線 X_0 は、赤道面に沿って入射角 θ で試料面Saに入射させる。この入射角の設定は、試料の ω 回転によって行われる。なお、図5において、赤道面は、原点Oを通り ψ 軸と直交する水平面である。

X線検出器1は、 ψ 軸と同軸周りに赤道面上を回転するカウンタームに装着されている。一般に、極点測定ではブラッグの回折条件を満足する赤道面上の対称位置、すなわち試料面Saに対するX線の入射角 θ と等しいX線の出射角方向にX線検出器1を配置する。つまり、X線検出器1は、カウンタームの ψ 軸周りの回転により、入射角 θ で試料に入射する入射X線 X_0 に対して、 2θ の角度位置に位置決めされる。

そして、試料Sを ω 軸周りに微小角度単位で回転させるとともに、所定の角度（あおり角 α ）ごとに、 χ 軸を中心に試料Sを面内回転させる。このようにして、各あおり角 α と面内回転角 ϕ をパラメータとし、試料面Saからブラッグ反射してくる回折X線 X_1 を、 2θ の角度位置に固定した赤道面上のX線検出器1で測定する。

この測定結果をポーラーネットと称するグラフに表示することで、極点図が作成される。ここで、ポーラーネットは、径方向にあおり角 α をとり、中心が $\alpha = 90^\circ$ 、外周が $\alpha = 0^\circ$ と定義されている。あおり角 α は、試料面が赤道面に対して直交するときを 90° としている。また、ポーラーネットにおいて、面内回転角 ϕ は円周方向にとる。

図7は冷間圧延した70-30CuZnの(111)を極とした極点図の例を示している。

さて、従来の極点測定は、入射X線にラインビームを用いているので、あおり角 α が小さくなると（すなわち、図5において試料面が水平面側に傾くと）、試料面に対する入射X線の照射幅が広がるとともに、入射X線の一部のみが回折に寄与することとなる結果、入射X線の強度がいちじるしく低下する。このため、あおり角 α の小さい低角度領域では、反射法、すなわち試料面から外側にブラッグ反射してきた回折X線を測定する方法によっては、極点を測定することができない。

そこで、従来は、低角度領域については、透過法、すなわち試料を透過してきた回折X線を測定する方法を用いて、極点測定を行っていた。一般に、あおり角 α が、 $90^\circ \sim 25^\circ$ の領域については反射法が用いられ、 $25^\circ \sim 0^\circ$ の領域では透過法が用いられていた。

しかしながら、透過法による測定では、試料の自己吸収により透過X線強度が減少するために、厚みのある試料や基板上に形成された試料では十分なX線強度が得られず、ごく薄い試料しか測定できないという難点があった。したがって、従来、これら厚みのある試料や基板上に形成された薄膜試料については、あおり角 α の低角度領域に関し、極点測定を行うことができなかった。

発明の開示

本発明は、従来の極点測定におけるあおり角 α の高角度領域から低角度領域に相当するインプレーン回折領域までのほぼすべての領域に対する極点測定を、反射法により実現することを目的とする。

ここで、インプレーン回折とは、図8に示すように、X線 X_0 を試料面Saに対して微小入射角度 θ で入射させると、試料Sの内部に試料面Saと平行に走るX線の成分が現れ、

10

20

30

40

50

そのX線成分が試料面S aに垂直な結晶面Pによって回折を起こして、回折X線X₂が試料面S aすれすれに出ていくという回折現象である。

本発明の極点測定方法は、インプレーン回折装置と称する次の機能を備えたX線回折装置を用いることにより実現される。すなわち、インプレーン回折装置は、図1に示すように、試料面S a上の原点O（一般に、試料中心）を通る軸周りに試料Sを回転させるとともに、軸と直交する第1の平面P 1（赤道面）に沿って軸を中心にX線検出器1を2回転させ、かつ軸を含み第1の平面P 1と直交する第2の平面P 2に沿って原点Oを中心にX線検出器1を2回転させる機能を備えている。

試料Sは上記軸上に試料面S aが配置され、試料面S a上の原点Oに向けて入射X線X₀が照射される。入射X線X₀の試料面S aに対する入射角度は、試料Sの回転によって設定される。また、インプレーン回折装置は、原点Oを通り試料面S aと直交する軸周りに試料Sを面内回転（回転）させる機能を備えている。

従来の4軸X線回折装置は、赤道面（原点Oを通り軸と直交する平面）上にあらわれる回折X線を検出する構成となっていたが（図5参照）、上述したインプレーン回折装置では（図1参照）、赤道面（原点Oを通り軸と直交する平面）と異なった回折面上に出射される回折X線を、X線検出器1の2回転および2回転の設定をもって検出可能となっている。なお、回折面とは、入射X線と試料からの回折X線が載る平面である。

本発明は、このようなインプレーン回折装置の特性を利用して、従来の4軸X線回折装置を用いた極点測定方法において、試料Sをあおり角だけ傾けたときに赤道面上にあらわれる回折X線を、試料Sを傾けることなくX線検出器1の2回転および2回転をもって、赤道面とは異なった回折面で検出することを特徴としている。

すなわち、本発明は、次の(a)～(d)の操作を含む方法をもって極点測定を行うものである。

(a) あらかじめ与えられたあおり角()に基づき、所定の原点(O)を通る所定の軸(軸)を中心に試料を回転させて試料面に対するX線の入射角()を、上記あおり角()だけ試料を傾けたときの極点測定位置に相当する所定位置へ設定する。

(b) 上記あおり角()に基づき、上記所定の軸(軸)と直交する第1の平面に沿って該所定の軸(軸)を中心にX線検出器を回転(2回転)させ、かつ上記所定の軸(軸)を含み上記第1の平面と直交する第2の平面に沿って原点(O)を中心にX線検出器を回転(2回転)させることにより、上記あおり角()だけ試料を傾けたときの極点測定位置に相当する所定位置へX線検出器を配置する。

(c) 上記あおり角()に基づき、試料の面内回転方向の測定角度に関する補正值()を算出し、あらかじめ与えられた試料の面内回転方向の測定角度()に上記補正值()を加味した面内回転方向の測定角度()を設定する。

(d) 次に、試料面から回折してくる回折X線を上記X線検出器で検出することにより試料の極点を求める。

これにより、あおり角の高角領域からインプレーン回折領域に相当するすべての測定領域に対し反射法による極点測定を実現し、薄膜試料や厚みのある試料に対しても高精度な極点測定データを得ることが可能となる。

【図面の簡単な説明】

図1は、本発明の極点測定方法に用いるインプレーン回折装置の概要を示す模式図である。

図2は、本発明に係る極点測定方法の原理を説明するための平面図である。

図3Aは、図2に続く、本発明に係る極点測定方法の原理を説明するための平面図である。

図3Bは、図2に続く、本発明に係る極点測定方法の原理を説明するための正面図である。

図3Cは、図2に続く、本発明に係る極点測定方法の原理を説明するための左側面図である。

図4Aは、図3に続く、本発明に係る極点測定方法の原理を説明するための平面図である

10

20

30

40

50

。図 4 B は、図 3 に続く、本発明に係る極点測定方法の原理を説明するための正面図である。

。図 4 C は、図 3 に続く、本発明に係る極点測定方法の原理を説明するための左側面図である。

図 5 は、従来の極点測定方法を説明するための模式図である。

図 6 は、一般的なポラーネットを示す図である。

図 7 は、冷間圧延した $70-30\text{CuZn}$ の (111) を極とした極点図である。

図 8 は、インプレーン回折を説明するための斜視図である。

発明を実施するための最良の形態

10

以下、この発明の最適な実施形態を図面に基づいて説明する。

本実施形態における極点測定方法では、図 1 に示したインプレーン回折装置を利用して、試料面 S_a のあおり操作の代わりに、X 線検出器を 2 回回転させている。そして、この回転操作によって、従来の 4 軸 X 線回折装置を用いた極点測定方法（図 5 参照）を実施した場合に、あおり角 θ で赤道面上にあらわれる回折 X 線を、該 2 回回転した位置で検出する。

図 2、図 3 A、図 3 B、図 3 C、図 4 A、図 4 B、図 4 C は本発明に係る極点測定方法の原理を説明するための図で、このうち図 2、図 3 A、図 4 A が平面図、図 3 B、図 4 B が正面図、図 3 C、図 4 C が左側面図である。

これらの図を参照して、本発明の極点測定方法の原理について説明する。

20

まず、図 1 に示したインプレーン回折装置の x 軸、 z 軸を z 軸、試料面 S_a 上のあおり軸に相当する軸を y 軸として、原点 O で交わる $x y z$ 直交座標系を想定する。

そして、図 2 に示すように、試料のあおり角 $\theta = 90^\circ$ のときの入射 X 線、回折 X 線、散乱 X 線の波数ベクトルを、それぞれ K_0 、 K_1 、 K とし、これらの各ベクトルが載る回折面 1 を赤道面上に定義する。

次に、図 3 A、図 3 B、図 3 C に示すように、回折面 1 を y 軸周りにあおり角 θ だけ傾けた状態の回折面 2 を定義し、この回折面 2 上の入射 X 線、回折 X 線、散乱 X 線の波数ベクトルを、それぞれ K_0' 、 K_1' 、 K' とする。

さらに、回折面 2 を x 軸周りに ϕ だけ図 4 B の反時計方向に回転し、この回折面 2 上にある入射 X 線の波数ベクトル K_0' を回折面 1 に載せる。このように ϕ だけ回転した回折面 2 を回折面 3 と定義し、この回折面 3 上の入射 X 線、回折 X 線、散乱 X 線の波数ベクトルを、それぞれ K_0'' 、 K_1'' 、 K'' とする。

30

本発明の極点測定方法では、あらかじめ設定された試料 S のあおり角 θ に対して、この回折面 3 の回折条件を満たすように、試料面 S_a に対する入射 X 線 X_0 の入射角度 α 、X 線検出器 1 の 2 回回転および 2 回回転の角度を設定する。さらに、上記あらかじめ設定された試料 S のあおり角 θ に基づいて、試料の面内回転方向の測定角度に関する補正値 β を算出する。そして、あらかじめ与えられた試料の面内回転方向の測定角度 α に上記補正値 β を加味した面内回転方向の測定角度 $\alpha + \beta$ を設定して、試料の極点測定を実行する。

すなわち、座標軸 x 、 y 、 z 周りの回転マトリクスを、それぞれ R_x 、 R_y 、 R_z とおくと、回転角 ϕ における回転マトリクス $R_x(\phi)$ 、 $R_y(\phi)$ 、 $R_z(\phi)$ は、次のように表される。

40

$$\mathbf{R}_x(\delta) \equiv \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos \delta & -\sin \delta \\ 0 & \sin \delta & \cos \delta \end{pmatrix} \cdots (1)$$

$$\mathbf{R}_y(\delta) \equiv \begin{pmatrix} \cos \delta & 0 & \sin \delta \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin \delta & 0 & \cos \delta \end{pmatrix} \cdots (2)$$

$$\mathbf{R}_z(\delta) \equiv \begin{pmatrix} \cos \delta & -\sin \delta & 0 \\ \sin \delta & \cos \delta & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \cdots (3)$$

10

次に、x、y、z座標軸の単位ベクトルを、それぞれ e_x 、 e_y 、 e_z とし、特定の反射のブラッグ角を β とすると、上述した回折面1に載る入射X線の波数ベクトル K_0 、回折X線の波数ベクトル K_1 、散乱X線の波数ベクトル K は、上式(3)を用いて、次のように計算される。

$$K_1 = R_z(-2\beta) K_0 \cdots (4)$$

$$K = K_1 - K_0 \cdots (5)$$

したがって、上述した回折面2に載る入射X線の波数ベクトル K_0' 、回折X線の波数ベクトル K_1' 、散乱X線の波数ベクトル K' は、次のように表される。

20

$$K_0' = R_y(\beta) K_0 \cdots (6)$$

$$K_1' = R_y(\beta) K_1 \cdots (7)$$

$$K' = K_1' - K_0' \cdots (8)$$

これにより、試料面Saの面内回転方向の測定角度に関する補正值 $\Delta\beta$ は以下のように計算することができる。

$$\Delta\beta = \cos^{-1} \frac{e_z \cdot (K_0 \times e_x)}{|e_z| |K_0 \times e_x|} \cdots (9)$$

$$K_0'' = R_x(\Delta\beta) K_0' \cdots (10)$$

$$K_1'' = R_x(\Delta\beta) K_1' \cdots (11)$$

30

次に、インプレーン回折装置におけるX線入射角 ω 、X線検出器の回転角 2θ および $2\theta_\chi$ 、試料面Saの面内回転方向の測定角度 ϕ は、以下のように計算される。なお、(15)式において、 ϕ はあらかじめ与えられた試料の面内回転方向の測定角度である。

$$\omega = \cos^{-1} \frac{e_y \cdot (K_0'')}{|e_y| |K_0''|} \cdots (12)$$

$$2\theta = \omega + \cos^{-1} \frac{e_x \cdot (K_1'' \times e_z)}{|e_x| |K_1'' \times e_z|} \cdots (13)$$

$$2\theta_\chi = 90^\circ - \cos^{-1} \frac{e_z \cdot (K_1'')}{|e_z| |K_1''|} \cdots (14)$$

40

$$\phi = \beta + \Delta\beta - 180^\circ \cdots (15)$$

ここで、(15)式において、 β から 180° 差し引いた角度に ϕ を設定しているのは、図3A、図3B、図3Cに示す回折面2の回転方向に対し、実際のおおり角 ϕ の回転方向は逆向きとなるため、その方向を修正したものである。

本発明の極点測定方法では、上記の(13)~(14)式を用いて、あらかじめ設定された試料のおおり角 ϕ に基づき、 ω 、 2θ 、 $2\theta_\chi$ の設定値を算出し、各設定値にインプレーン回折装置をセッティングする。そして、(15)式で求めた試料Sの面内回転方向の測定角度 ϕ を設定し、極点を測定する。この発明による極点測定方法では、試料のおおり

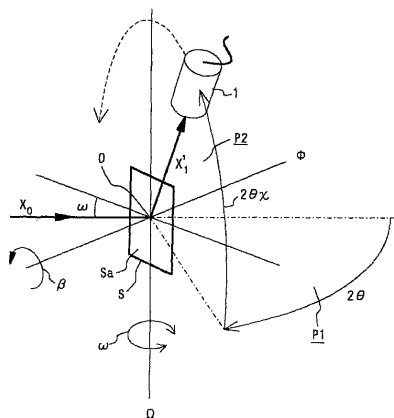
50

操作を伴わないので、あおり角 の高角領域からインプレーン回折領域に相当するすべての測定領域に対し反射法による極点測定を行うことができる。

産業上の利用可能性

以上説明したように、本発明によれば、あおり角 の高角領域からインプレーン回折領域に相当するすべての測定領域に対し反射法による極点測定を実現し、薄膜試料や厚みのある試料に対しても高精度な極点測定データを得ることができる。

【 図 1 】 Fig. 1



【 図 2 】

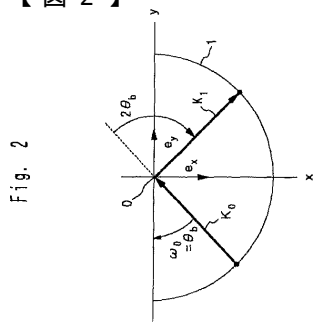


Fig. 2

【 図 3 A 】

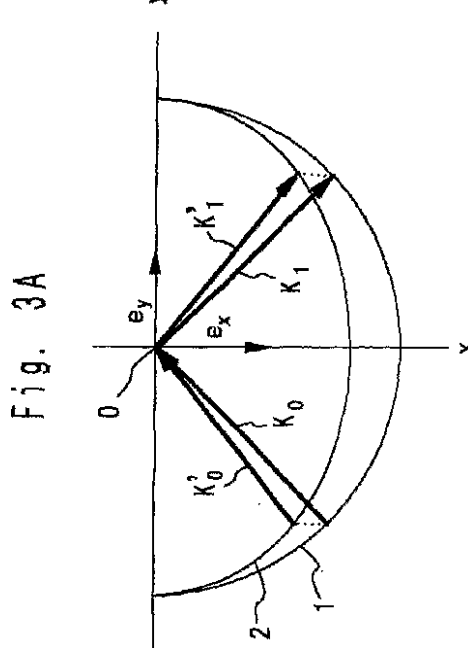
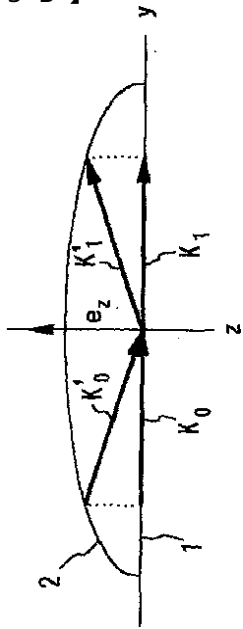


Fig. 3A

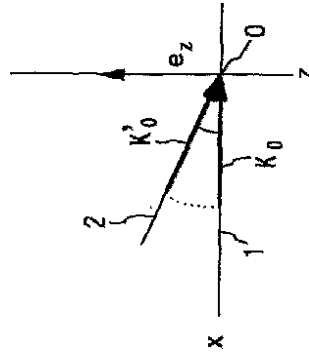
【 図 3 B 】

Fig. 3B



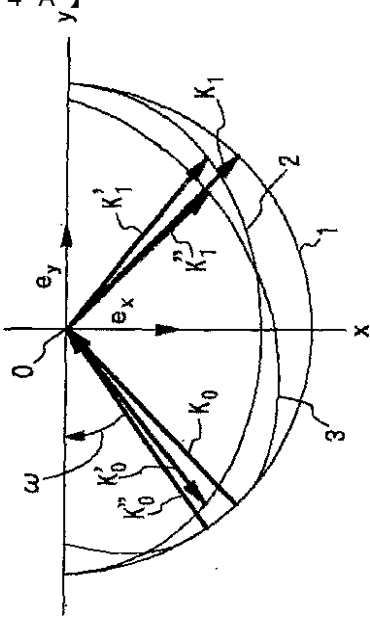
【 図 3 C 】

Fig. 3C



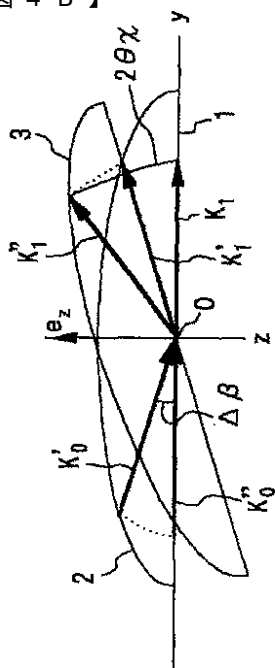
【 図 4 A 】

Fig. 4A

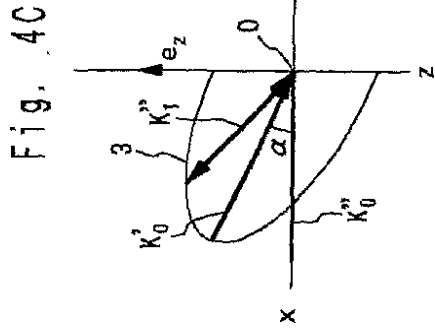


【 図 4 B 】

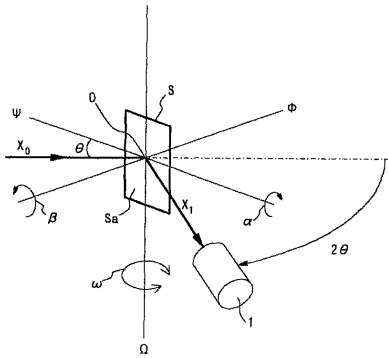
Fig. 4B



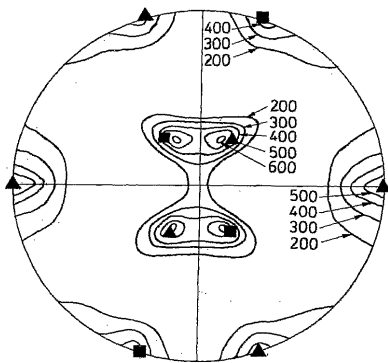
【 4 C 】



【 5 】 Fig. 5

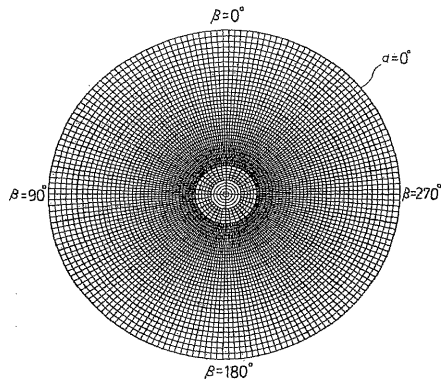


【 7 】 Fig. 7



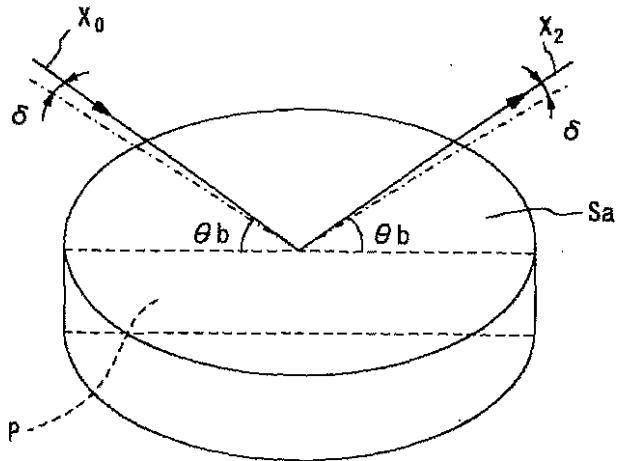
【 6 】

Fig. 6



【 8 】

Fig. 8



フロントページの続き

(72)発明者 松尾 隆二
東京都昭島市松原町3 - 9 - 12 理学電機株式会社内

審査官 高 場 正光

(56)参考文献 特開2001-56304(JP,A)
特開平11-304730(JP,A)
特開平11-287773(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl.⁷, DB名)

G01N23/00-23/227

JICSTファイル(JOIS)

Web of Science

ScienceDirect