



PF研究会「開発研究多機能ビームラインの建設と利用」②

## 放射光2ビーム利用による結晶欠陥のその場観察

---

### X線トポグラフィUG

○鈴木 凌, 橘 勝 (横浜市立大学)

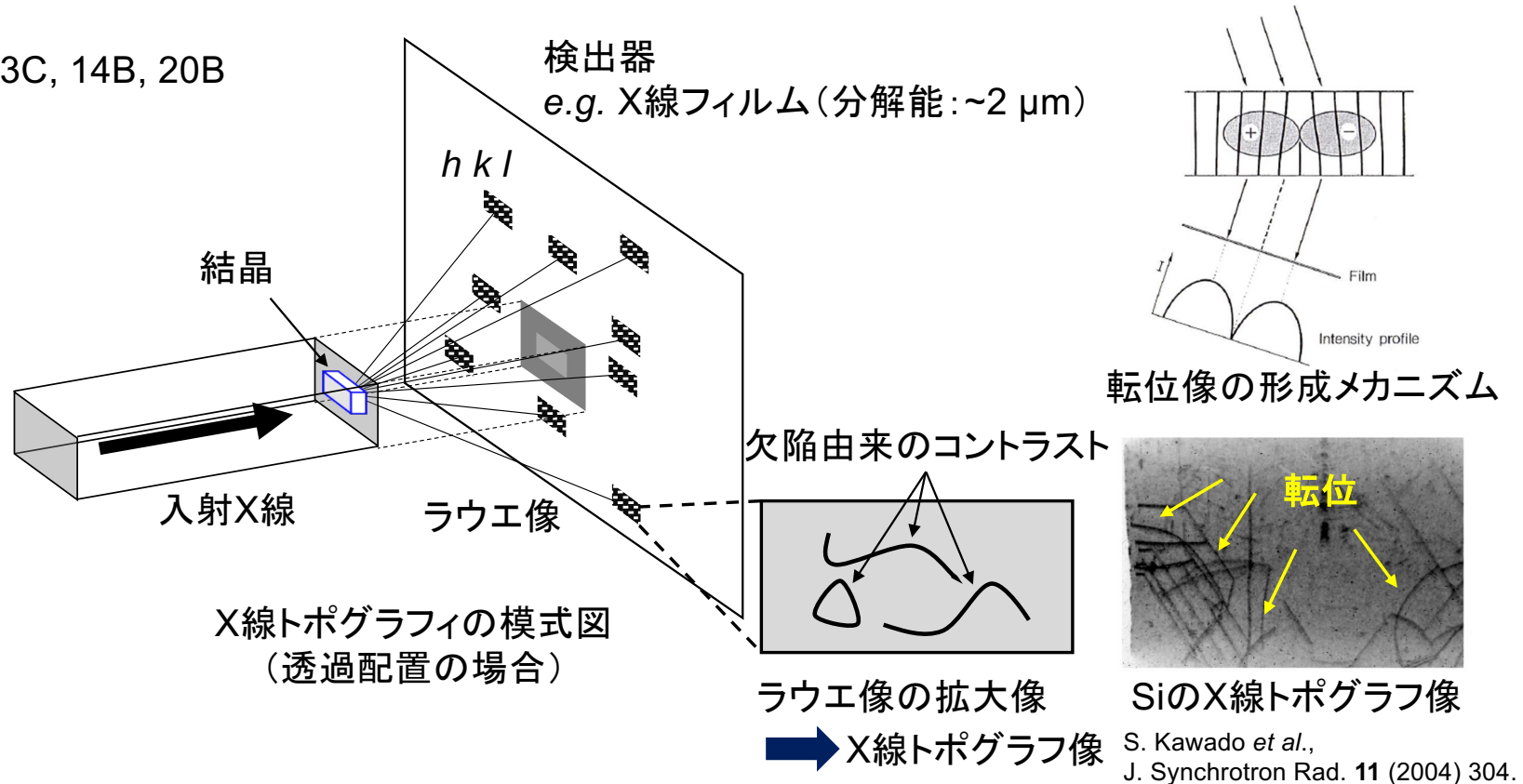
姚 永昭 (ファインセラミックスセンター)

加藤 有香子 (産業技術総合研究所)

小泉 晴比古 (広島大学, UG代表)

# X線トポグラフィ – X線イメージングによる結晶欠陥の観察 –

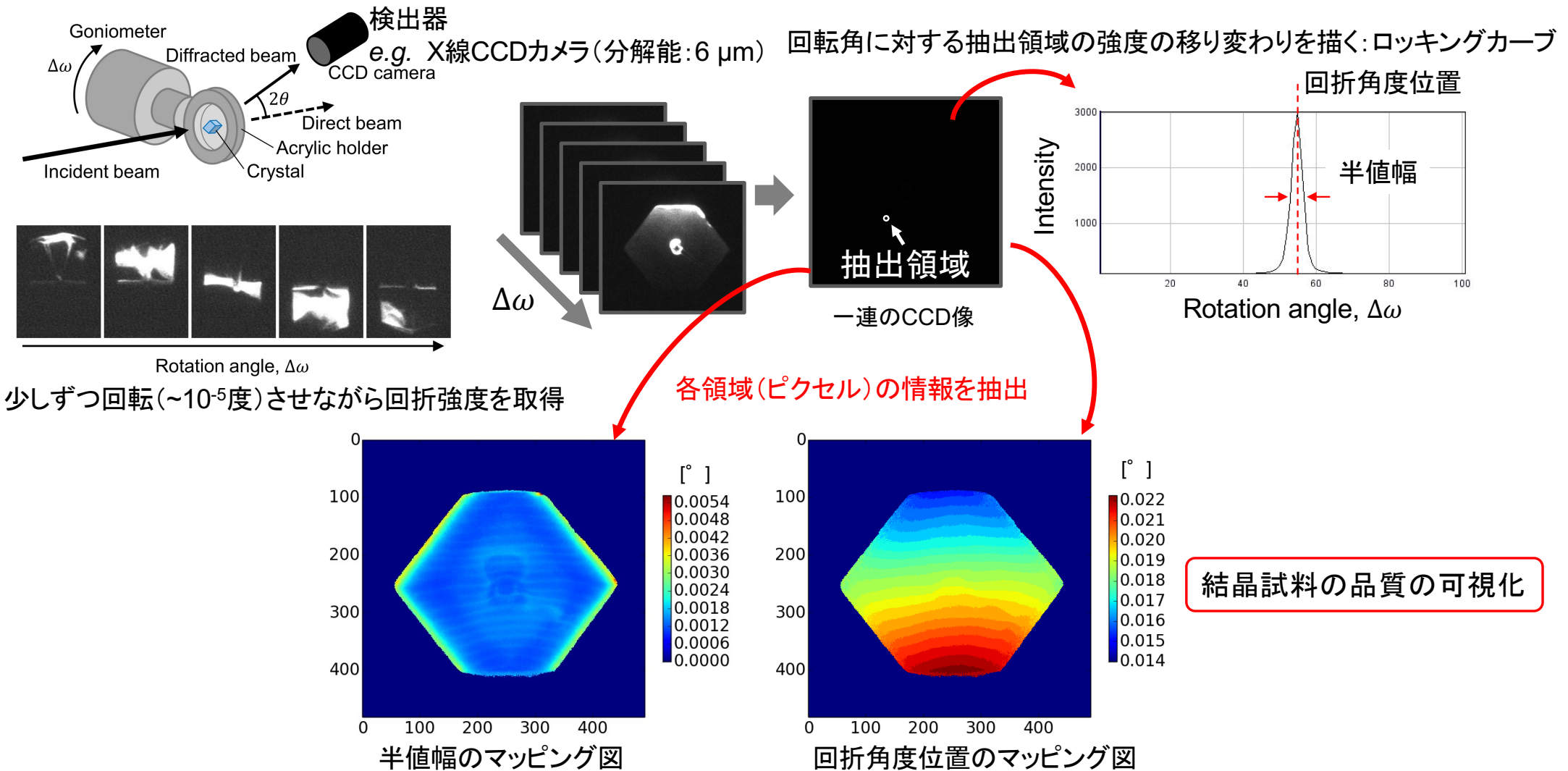
主要BL: BL-3C, 14B, 20B



試料を破壊することなく、結晶内部の欠陥(結晶格子の乱れ)を観察することが出来る。

結晶材料中の欠陥のイメージング

# ロッキングカーブイメージング (デジタルX線トポグラフィ)



---

## イメージング技術を活かした放射光2ビーム利用技術の提案課題

---

- 放射光照射による欠陥の核形成 —タンパク質結晶をモデルとして—  
(横浜市立大学 橘 教授・鈴木 助教)
  
- デバイス動作時における欠陥挙動の解明 —デバイス全体の欠陥挙動の同時測定—  
(ファインセラミックスセンター 姚 上級研究員)
  
- 不純物添加による転位密度低減機構の解明  
電子デバイスの電極(電極形成プロセス)評価  
量子デバイスの特性評価 —欠陥と不純物の同時測定—  
(産業技術総合研究所 加藤 主任研究員)

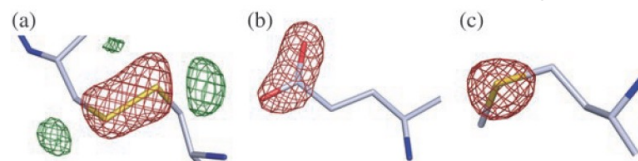
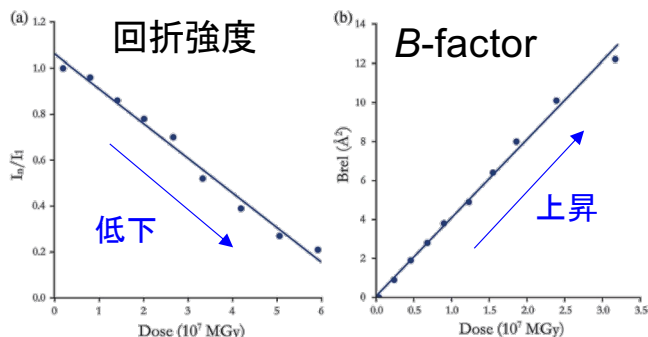
(現在までの提案)

---

# 高輝度X線によるタンパク質結晶の照射損傷

＜タンパク質結晶の高分解能X線構造解析を阻む課題－高輝度X線による照射損傷－＞

例として、E.F. Garman & M. Weik, *Methods Mol. Biol.* 1607 (2017) 467.



照射によって結合が切れるアミノ酸

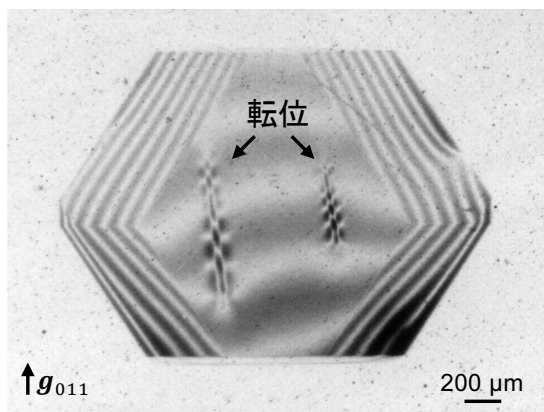
高輝度X線のメリットとデメリットのトレードオフ  
高輝度 → 結晶サイズ小 but ダメージ増

照射損傷の理解が高分解能達成への鍵

金属や無機材料のような放射線損傷による格子欠陥は  
タンパク質結晶では存在しないのか？

回折強度とB-factorのDose量(照射線量)依存性

＜高輝度X線を当てるだけで発生するタンパク質結晶の欠陥の初観測＞ R. Suzuki *et al.*, *Acta Cryst. D* 78 (2022) 196.



X線照射後のトポグラフィ像

わずか“60 kGy/s”の低いDose rateでタンパク質結晶中に格子欠陥(転位)が発生。

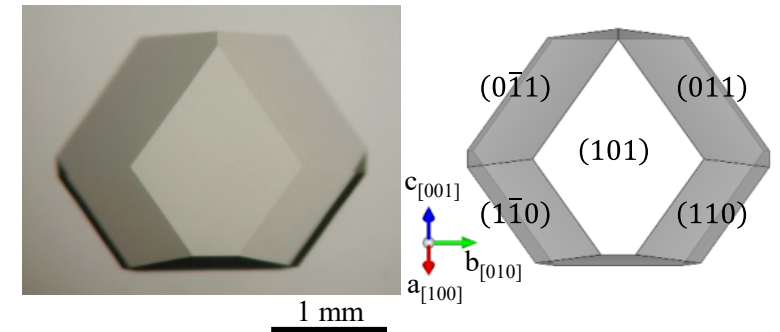
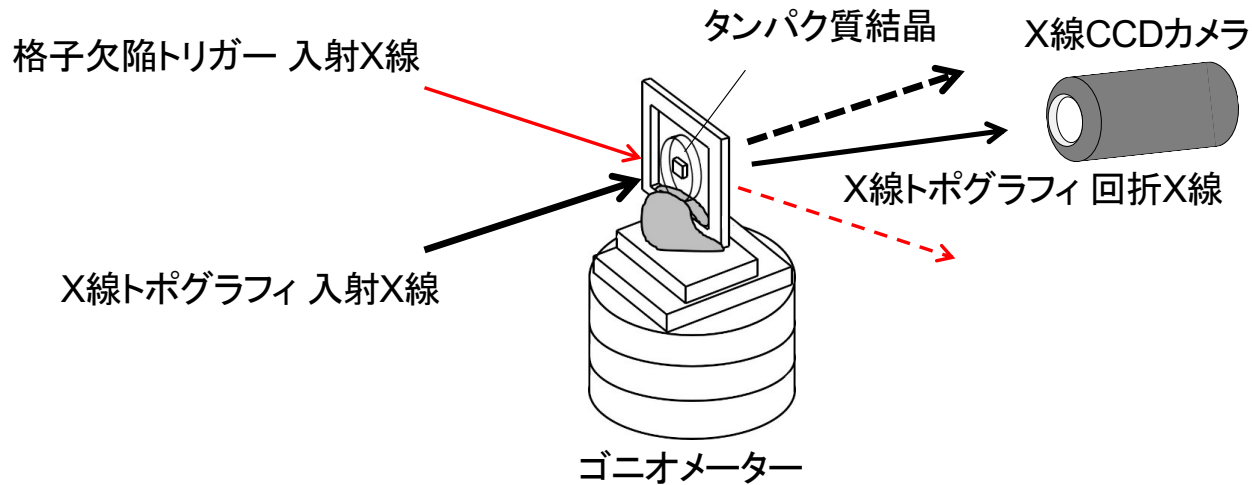
- ✓ X線照射方向と格子欠陥の発生方向に相関がある。
- ✓ 合計のDoseではなく、Dose rateが格子欠陥の発生・導入に寄与する。
- 高輝度X線によるタンパク質結晶の照射損傷による格子欠陥が初めて明らかとなった。

放射光2ビーム利用による格子欠陥の核形成のリアルタイム検出

放射光による欠陥の核形成機構解明－タンパク質結晶をモデルとして－  
結晶性の低下の抑制・制御による分解能向上(タンパク質の結晶構造解析に限ると)

# 2ビーム利用によるタンパク質結晶の格子欠陥のその場観察

## <想定する実験レイアウト>



X線トポグラフィ用タンパク質結晶

◎結晶学的な面や方向を考慮した定量性

## <想定する実験条件>

- ① 格子欠陥トリガー用 入射X線
  - ✓ 集光ビーム(数~数十ミクロン)
  - ✓ エネルギー可変(白色含む)
  - ✓ フラックス密度可変
- ② X線トポグラフィ用 入射X線
  - ✓  $1 \times 1 \text{ mm}^2$ 程度の面積(完浴条件が理想)
  - ✓ エネルギー可変(主に $1.2 \text{ \AA}$ 程度の単色光)
- ③ 温度条件設定
  - ✓ クライオ~室温程度の温度制御

◎ビームサイズ、エネルギー、フラックス密度の条件制御による欠陥発生の定量化

2ビームを利用したタンパク質結晶の照射損傷のその場観察と格子欠陥的解釈によるメカニズム解明への挑戦

---

## イメージング技術を活かした放射光2ビーム利用技術の提案課題

---

- 放射光照射による欠陥の核形成 —タンパク質結晶をモデルとして—  
(横浜市立大学 橘 教授・鈴木 助教)
  
- デバイス動作時における欠陥挙動の解明 —デバイス全体の欠陥挙動の同時測定—  
(ファインセラミックスセンター 姚 上級研究員)
  
- 不純物添加による転位密度低減機構の解明  
電子デバイスの電極(電極形成プロセス)評価  
量子デバイスの特性評価 —欠陥と不純物の同時測定—  
(産業技術総合研究所 加藤 主任研究員)

(現在までの提案)

---

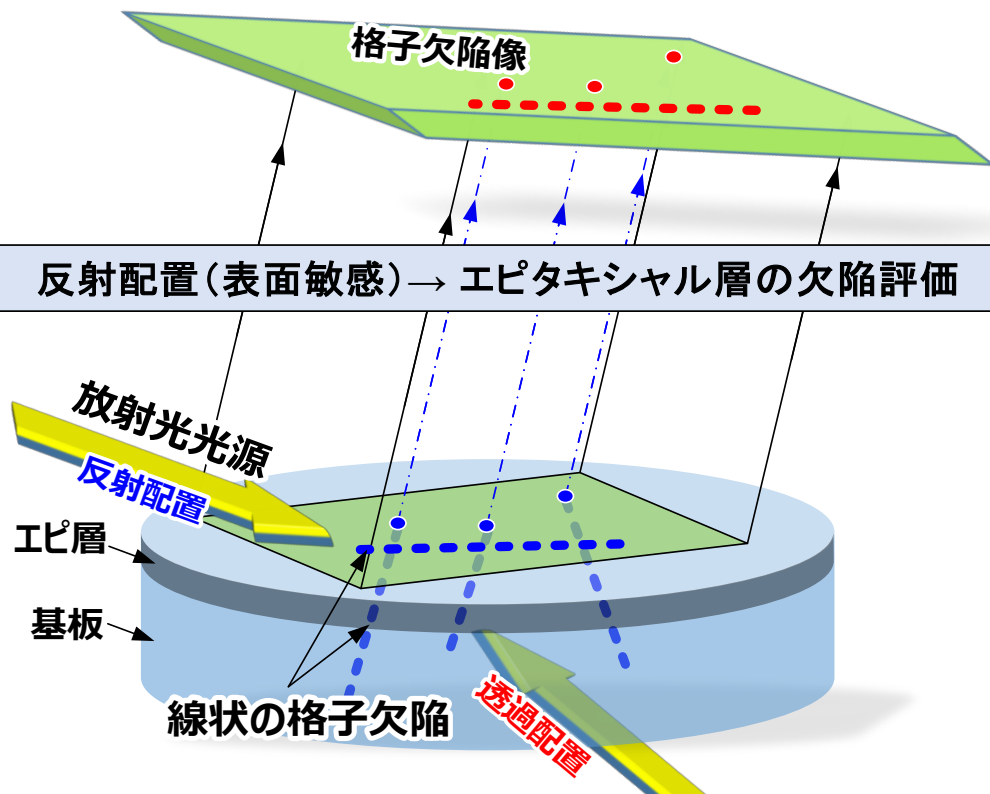


# X線トポグラフィによるパワーデバイスのオペランド観測

## 「反射+透過」配置のオペランド観測

(撮影媒体: 高分解能カメラ)

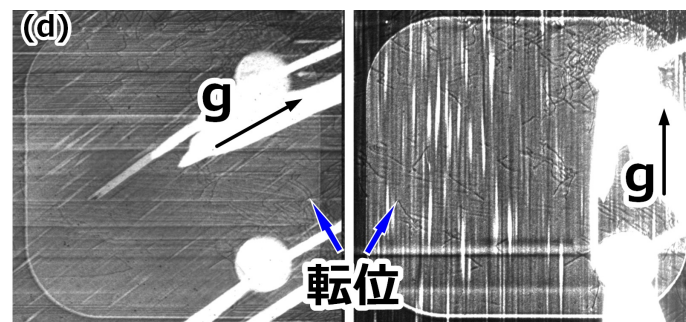
動作中のデバイスにおける欠陥の挙動を明らかにする



反射配置 (表面敏感) → エピタキシャル層の欠陥評価

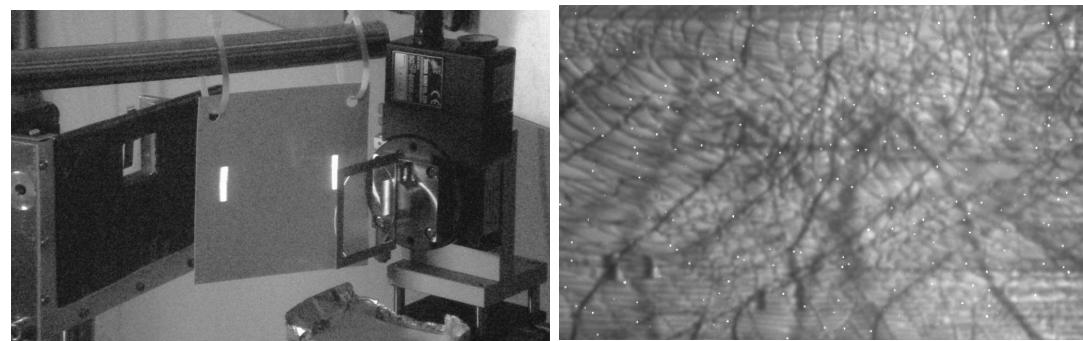
透過配置 (結晶内部) → 基板の欠陥評価

## 反射配置の実施例 (BL-14B、BL-3C)



反射XRTで撮影したエピ層の欠陥像 (電極直下)

## 透過配置の実施例 (BL-14B)



蛍光板による異常透過発生の確認

異常透過XRTで撮影した結晶内部の欠陥像

デバイス全体において  
欠陥の挙動を同時に観測



---

## イメージング技術を活かした放射光2ビーム利用技術の提案課題

---

- 放射光照射による欠陥の核形成 —タンパク質結晶をモデルとして—  
(横浜市立大学 橘 教授・鈴木 助教)
  
- デバイス動作時における欠陥挙動の解明 —デバイス全体の欠陥挙動の同時測定—  
(ファインセラミックスセンター 姚 上級研究員)
  
- 不純物添加による転位密度低減機構の解明  
電子デバイスの電極(電極形成プロセス)評価  
量子デバイスの特性評価 —欠陥と不純物の同時測定—  
(産業技術総合研究所 加藤 主任研究員)

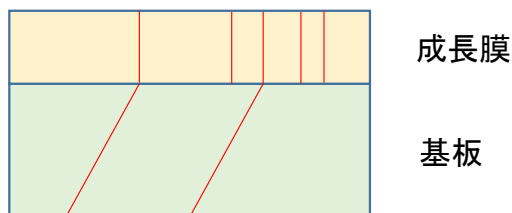
(現在までの提案)

---

# 不純物添加による転位密度低減機構の解明

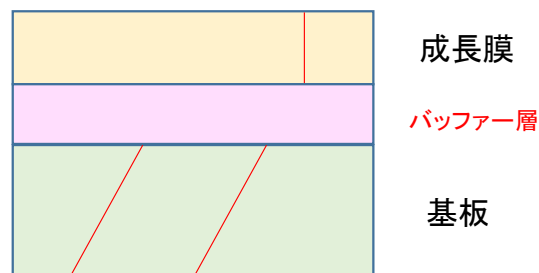
## 課題

- 理想: 成長膜中の転位を減らす
- ×現実: 転位の増加(引継ぎ+新規)



## 課題解決?

バッファ層を挟むと成長膜の欠陥由来の発光(CL)が減少する



※バッファ層: 成膜中に不純物が入ってしまった層  
...バッファ層で何が起きているのか?

〇〇 不純物が転位をキャップしている  
ことを期待(妄想)している

## 検討①

TEMは?

バッファ層中の不純物濃度( $\sim 10^{18}/\text{cm}^3$ )  
転位密度( $10^2 \sim 10^4/\text{cm}^2$ )

転位密度  
少ない

## 検討②

X線トポで転位観察して、  
TEM像(不純物分布)と重ねる?

位置合わせ  
難しそう

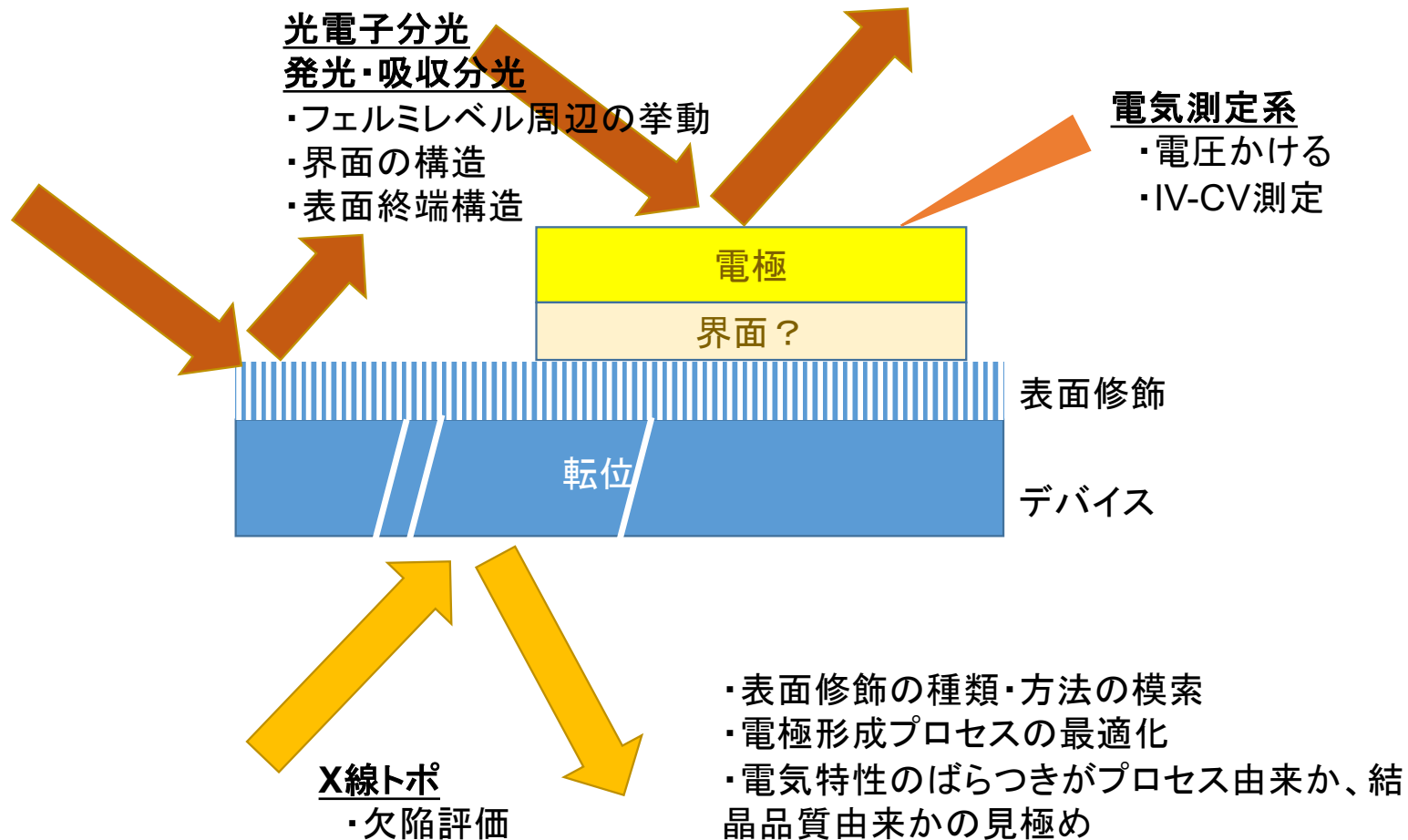
## 検討③

X線トポで転位観察して、  
そこにどんな元素があるかわかるといい

そんな便利な  
システムない

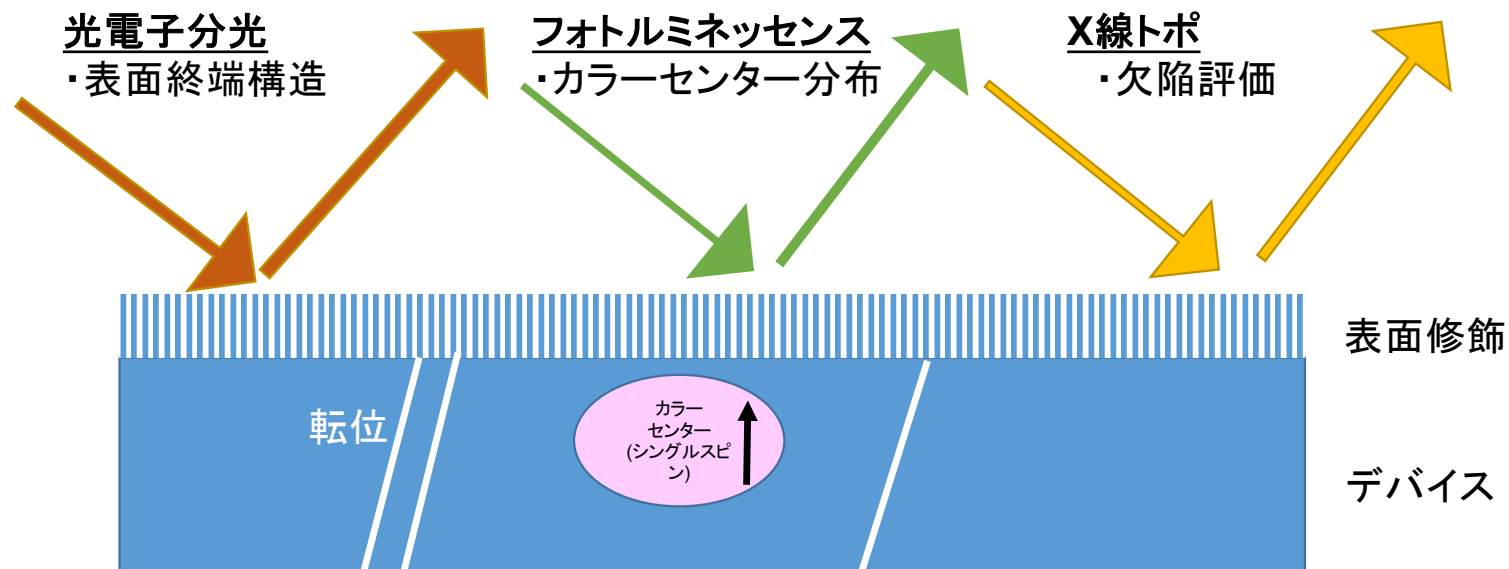
光電子の二次元イメージとX線トポを一緒に得られたら、確証が得られるかも...?

# 電子デバイスの電極(電極形成プロセス)評価



※電極の薄さは実験に合わせなければいけないのが悩ましい所

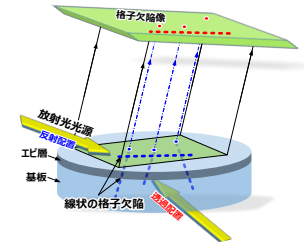
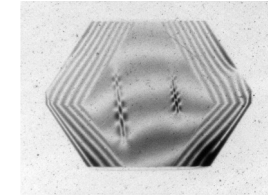
# 量子デバイスの特性評価



※フォトルミネッセンスよりも、  
電子スピンを見られた方が直接的。

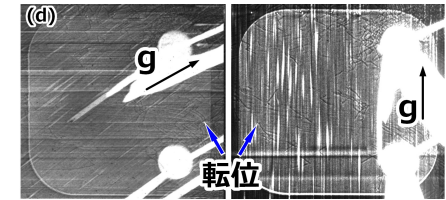
# X線トポグラフィUGの目指す放射光2ビーム利用による知の創製

- 放射光照射による欠陥の核形成 –タンパク質結晶をモデルとして–  
(横浜市立大学 橘 教授・鈴木 助教)



- デバイス動作時における欠陥挙動の解明 –デバイス全体の欠陥挙動の同時測定–  
(ファインセラミックスセンター 姚 上級研究員)

- 不純物添加による転位密度低減機構の解明 –欠陥と不純物の同時測定–  
(産業技術総合研究所 加藤 主任研究員)



欠陥の核形成機構・動的挙動の理解は、欠陥制御を行う上で必須

## ◎学術的な基盤創製と還元

- 材料特性の飛躍的な発展、エネルギー技術を支える新奇な新材料の開発
- 持続的な社会の発展にも資する

放射光2ビーム利用をベースとしたX線トポグラフィによる欠陥の核形成・動的挙動解明への挑戦

---

---

---