

# 薄膜・多層膜による中性子散漫散乱解析コードの開発

日本原子力研究所東海研究所  
中性子利用研究センター

曾山 和彦

## 1. はじめに

平坦で平滑な物質の表面で低エネルギーの中性子が光学的な全反射（反射率=1）を起こすことは、1946年エンリコ・フェルミによって発見された。その後、1980年代以降、この中性子の全反射現象に基づく中性子反射率法は、表面分析手法として急速に確立されてきた。

中性子の全反射現象は、例えば金属ニッケルの場合、2200m/秒の速度の中性子で約0.2度といった微小角度で物質に入射する際に起こるもので、中性子は、深さ1ミクロン程度の表面と相互作用し、物質の深さ方向の原子密度分布や、表面・界面の幾何学的な形状（粗さ）などの構造に非常に敏感に反応する。これは、中性子が物質に入射する際に、一部は表面で反射し、一部は屈折して内部の界面でさらに反射して表面で反射した中性子と重なり合い、光路差に基づく位相差で中性子強度に強弱がつくという現象に基づいている。

表面・界面の研究手段としての中性子反射率法は、①同位体置換によって同じ物質間でもコントラストをつけられ、例えば、HをDで置換して同種の高分子間の界面構造を測定できる。②中性子散乱長が原子番号に対してランダムであるため、原子番号が近い物質についてコントラストがつく、③物質中の透過性が高いため超高圧、極低温、超高磁場などの極端条件下での表面構造研究が可能、④磁

性体が中性子のスピンに依存した屈折率を示すため、表面・界面の磁気モーメントの分布が測定できるなど、他の荷電粒子や電磁波による表面分析法に対して、非常にユニークな特徴を持っている。

近年の先端研究・技術は、超格子半導体やコンピュータなど記憶媒体としての強磁性・強誘電体、さらには高温超電導体等の開発に見られるようにナノメートルでの多層膜や薄膜の作製、評価技術を不可欠としている。また、有機薄膜を用いた電子・光素子、リン脂質膜等の生体薄膜の構造研究まで広範な利用研究の需要がある。この中で、中性子は上述の特徴を活かし、その利用が盛んになってきている。

日本原子力研究所では、これら中性子を用いた表面・界面研究を目的として、JRR-3に専用実験装置の整備を進めるとともに、これらの現象をシミュレーションするための計算コードを開発してきた。本稿では、薄膜や多層膜での表面・界面の原子組成及び粗さなどに依存して起こる散漫散乱に関するシミュレーションコードについて述べる。

## 2. 薄膜による中性子散漫散乱

### 2.1 薄膜表面のラフネス

図1に示す薄膜表面のモデルを示す。 $z(x,y)$ は平面内の座標 $(x,y)$ での表面の高さである。もし、表面上のある二つの高さ

が、それぞれの $z(x,y)$ ,  $z(x',y')$ で、高さの差分 $[z(x',y')-z(x,y)]$ がガウス分布であれば、算術平均高さは次式の様に定義される<sup>1,2,3</sup>。

$$g(X,Y) = \langle [z(x',y') - z(x,y)]^2 \rangle \quad (2.1.1)$$

ここで、 $(X,Y)=(x'-x, y'-y)$ であり、この平均値は表面上のすべてのペアポイントを取って行われる。

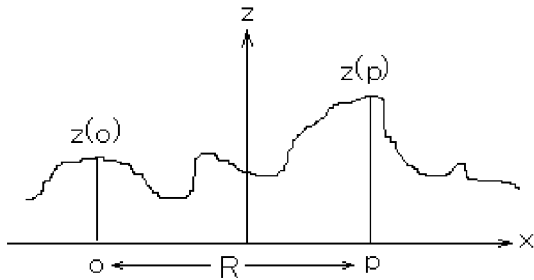


図1 薄膜におけるラフネスの表面、 $z(p)$ は表面の高さ

粗さが等方的なランダム表面の場合、自己相似的なモデルが一般的に知られており、 $g(X,Y)$ は

$$g(X,Y) = g(R) = AR^{2h} \quad (0 < h < 1) \quad (2.1.2)$$

となる。ここに、 $R = (X^2 + Y^2)^{1/2}$ で、 $h$ はHurst指数である。

・ Hurst 指数

Hurst指数 $h$ は局部表面の凹凸に関する情報を表す。小さい $h$ は凹凸の激しい面を、大きい $h$ は平坦な表面を表す。すなわち、Hurst指数 $h$ は表面のラフネスにおける凹凸の度合いを決める。しかし、 $z$ 方向と $x, y$ 方向のscaleが違うので、自己相似的なラフ表面にとって、フラクタルにおける本当の特性は現れない。範囲スケール $\ll R_0$ の場合、表面がフラクタル表面とみなすことができる。フラクタル次元 $D$ の間に、 $h = 3 - D$ の関係がある。これらのパラメーターにより実際の表面形状がどのように表現されるのを計算した結果を図2に示す。

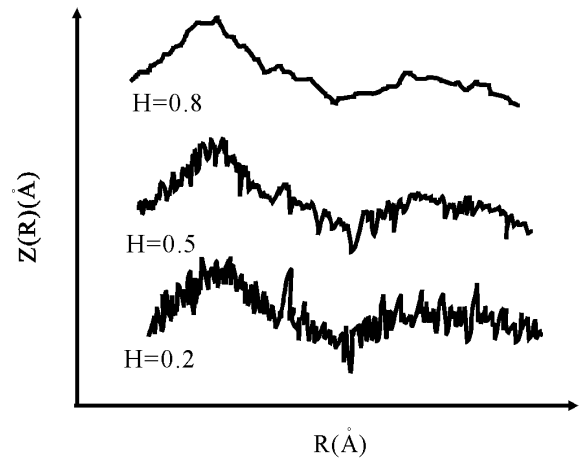


図2 Hurstパラメーター Hによる表面形状

・ rms表面粗さ $\sigma$ と相関距離 $\xi$

薄膜表面のラフネスを詳しく述べるため、rms表面粗さ $\sigma$ と相関距離 $\xi$ を導入する。rms表面粗さ $\sigma$ は表面の縦の方向におけるラフネスを表す。換え言えば、 $\sigma$ 値はすべてのラフネスの高さに対する差の平均値に相当する。一方、相関距離 $\xi$ は表面の横の方向におけるラフネスを表し、ラフネスに対する有効なカットオフ距離と考えられる。

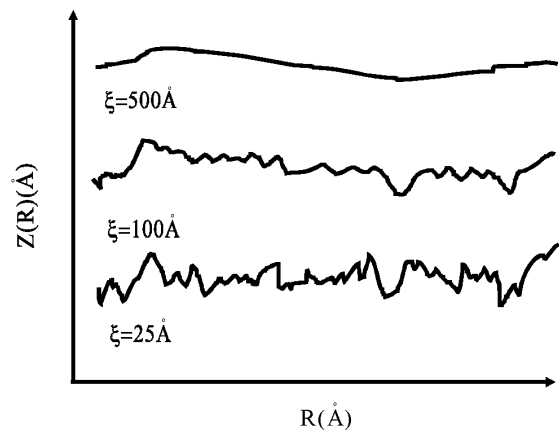


図3 相関距離 $\xi$ による表面形状

2.2 相関関数

限りがある範囲に対し、以上の三つのパラメーターを導入して、 $g(R)$ は式のように書き直す。

$$g(R) = 2\sigma^2 [1 - e^{-(R/\xi)^{2h}}] \quad (2.2.1)$$

ここで、 $R \ll \xi$ の時、式(2.2.1)が式(2.1.2)に変換される。 $\xi$ は式(2.1.1)の中でのラフネスに関する有効なカットオフ長さと考えられる。そして、 $\xi$ を利用し、式(2.1.1)から、算術平均高さは

$$g(X,Y) = 2\langle z^2 \rangle - 2\langle z(X,Y)z(0,0) \rangle \quad (2.2.2)$$

と(2.2.2)の式が得られる。もし、 $\langle z^2 \rangle = \sigma^2$ と書ければ、表面のラフネスに関する相関関数 $C(X,Y)$ を下式のように定義される。

$$C(X,Y) \equiv \langle z(X,Y)z(0,0) \rangle = \sigma^2 - g(X,Y)/2 \quad (2.2.3)$$

式(2.2.1)を式(2.2.3)に代入して、相関関数は

$$C(R) = \sigma e^{-(R/\xi)^{2H}} \quad (2.2.4)$$

となる。

## 2.3 薄膜による中性子の伝播

### 2.3.1 波動方程式

波長 $\lambda$ の中性子は真空中から薄膜へ入射する場合、その波数ベクトル $k_0$ は

$$k_0 = \frac{2\pi}{\lambda} \quad (2.3.1)$$

と表され、また、

$$\epsilon_0 = \frac{\hbar^2 k_0^2}{2m} \quad (2.3.2)$$

はエネルギーである。入射中性子の波動関数

$$\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2\psi}{dr^2} + [\epsilon - V(R)]\psi = 0 \quad (2.3.3)$$

と表わされる。ここに $m$ は中性子の質量で、 $\epsilon$ は入射中性子のエネルギーで、 $V$ は相互作用におけるポテンシャルである。

### 2.3.2 中性子の屈折率

光学的特性の異なる薄膜の鏡面に中性子波が入射すると、2つの波に分けられる。1つは透過波と呼び、薄膜から基板に進む波であり、もう1つは反射波と呼ばれ、再び薄膜にも戻る波である。ここでは一応これらの波が

平面波とあると仮定して、この波が薄膜での光学屈折率がどのように表わされるかを調べる。

入射する中性子が等角の位置に反射するものを鏡面反射と呼ぶ。図3のように中性子の鏡面反射を考える。反射波の遷移運動量ベクトル $q$ は

$$q = k_r - k_i \quad (2.3.4)$$

と表わされるから、Z方向に投影した遷移運動量ベクトルは

$$q_z = \frac{4\pi}{\lambda} \sin \theta_m \quad (2.3.5)$$

となる。

磁界を無視し、schredinger方程式をhelmholtz伝播方程式に書き直す<sup>5)</sup>。

$$\frac{d^2\psi}{dr^2} + k^2\psi = 0 \quad (2.3.6)$$

ここに、 $k^2 = \frac{2m}{\hbar^2} [\epsilon - V]$ である。その屈折率は

$$n^2 = \frac{k^2}{k_n^2} \quad (2.3.7)$$

のように定義される。そして、屈折率 $n$ は<sup>4)</sup>

$$n^2 = 1 - \frac{V}{\epsilon} = 1 - \lambda^2 \frac{Nb_{coh}}{2\pi} \quad (2.3.8)$$

または、

$$1 - n \quad (2.3.9)$$

は、 $10^{-5}$ のオーダーであるから、

$$n = 1 - \frac{V}{\epsilon} = 1 - \lambda^2 \frac{Nb_{coh}}{2\pi} \quad (2.3.9)$$

と表わされる。ここに $N$ は単位体積当りの原子核の数で、 $b_{coh}$ はcoherentな散乱半径を表わす。

### 2.3.3 全反射の臨界角

snell法則により、二つの界面に次の関係がある。

$$\cos \theta_{in} = n \cos \theta_{tr} \quad (2.3.10)$$

全反射が起こる場合、 $\theta_{tr}$ は $\theta_{tr}=0$ とすると、

臨界角度  $\theta_c$  は

$$\cos \theta_c = n \quad (2.3.11)$$

と書ける。臨界角度  $\theta_c$  が小さいから、式 (2.3.9) と式 (2.3.11) の関係を用い、式 (2.3.11) は Taylor 公式により

$$\theta_c = \lambda \sqrt{\frac{\rho b}{\pi}} \quad (2.3.12)$$

となる。この臨界角度に対応する遷移運動量は次式の様になる。

$$q_c = \frac{4\pi \sin \theta_c}{\lambda} = 4\sqrt{\pi \rho b} \quad (2.3.13)$$

表 1 に種々の元素と散乱半径、屈折率及び臨界波数を示す。

表 1 散乱半径、屈折率及び臨界波数

| Material          | Bn<br>(fm) | $\rho$<br>( $10^{28}\text{m}^{-3}$ ) | $\rho b$<br>( $10^{13}\text{m}^{-2}$ ) | $\delta$<br>( $10^{-6}$ ) | $q_c$<br>( $\text{nm}^{-1}$ ) |
|-------------------|------------|--------------------------------------|--|---------------------------|-------------------------------|
| H(hydrogen)       | -3.73      |                                      |  |                           |                               |
| O                 | 6.64       | 11.3                                 | 75                                     | 19.1                      | 0.19                          |
| Si                | 4.15       | 5.00                                 | 20.8                                   | 5.28                      | 0.10                          |
| Ti                | -3.44      | 5.66                                 | -19.5                                  | -5.0                      | -                             |
| Fe                | 9.45       | 8.50                                 | 80.3                                   | 20.45                     | 0.20                          |
| Co                | 3.63       | 8.97                                 | 32.6                                   | 8.29                      | 0.13                          |
| Ni                | 10.3       | 0.14                                 | 94.1                                   | 24.0                      | 0.22                          |
| Cu                | 7.72       | 8.45                                 | 65.2                                   | 16.6                      | 0.18                          |
| Ag                | 5.92       | 5.85                                 | 34.6                                   | 8.82                      | 0.13                          |
| Au                | 7.63       | 5.9                                  | 45                                     | 11.5                      | 0.15                          |
| H <sub>2</sub> O  | -1.68      | 3.35                                 | -5.63                                  | -1.43                     | -                             |
| Si <sub>2</sub> O | 15.8       | 2.51                                 | 39.7                                   | 10.1                      | 0.14                          |
| polystyrene       | 23.2       | 0.61                                 | 14.2                                   | 3.6                       | 0.084                         |

## 2.4 DWBA理論による散漫散乱

基板の凹凸や薄膜製作の欠陥などで、薄膜表面が平坦にならず原子オーダーに渡るラフネスが存在する。このラフネスの影響のため、入射中性子が鏡面反射する際、図 4 のように入射角度に対する等角でない位置にも微弱な散乱が観測される。これは散漫散乱と呼ばれる。

1988年のSinhaによるDWBA理論の導入は、摂動理論を用い、等方的なランダムな粗さを持つ表面についての散漫散乱強度の定式化に非常に大きな影響を与えたと考えられ

る<sup>1)</sup>。

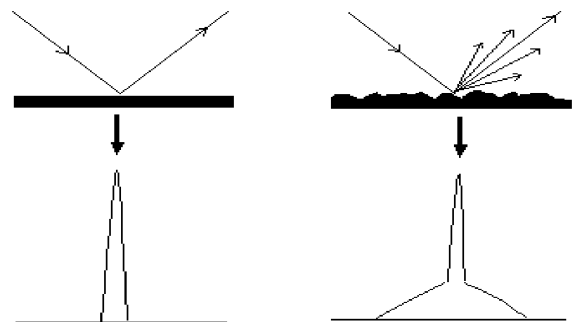


図4 鏡面反射と散漫散乱

中性子が平面に入射すると、stationary 波動方程式は

$$\nabla^2 \psi + k_0^2 \psi - V\psi = 0 \quad (2.4.1)$$

ここに、 $k_0 = \frac{2\pi}{\lambda}$

$$(2.4.2)$$

$$V = k_0^2(1 - n^2) \quad (2.4.3)$$

一方ランダムな粗さを持つ表面に対し、ポテンシャル  $V$  は下式のように定義される。

$$V = V_1 + V_2 \quad (2.4.4)$$

ここに、 $V$  は  $-a < z < 0$  の箱型ポテンシャルを示す。

$$V_1 = \begin{cases} k_0^2(1 - n^2), & -a < z < 0 \\ 0, & z > 0. \end{cases} \quad (2.4.5)$$

$$V_2 = \begin{cases} k_0^2(1 - n^2), & z(x, y) > 0 \text{ の場合}, 0 < z < z(x, y) \\ -k_0^2(1 - n^2), & z(x, y) < 0 \text{ の場合}, z(x, y) < z < 0 \\ 0, & \text{ほか.} \end{cases} \quad (2.4.6)$$

ここに、 $z(x, y)$  は座標  $(x, y)$  での表面の高さである。表面がランダムな粗さを持つため、 $V_2$  は  $V_1$  の摂動と考えられる。言い換えると、 $V_2=0$  の場合、表面は粗さがなく平面であることを意味している。

Fresnel原理に基づいて、式 (2.4.1) の解について、固有状態 1 における平面波の近似での入射波と散乱波の波動関数：

$$\psi_1(r) = \begin{cases} C[e^{ik_1 \cdot r} + R(k_1)e^{ik_1' \cdot r}], & z > 0 \\ CT(k_1)e^{ik_1 \cdot r}, & z < 0 \end{cases} \quad (2.4.7)$$

ここに、 $k_1$  は入射中性子の波数ベクトルで、 $k_1'$  は反射中性子の波数ベクトルで、 $k_1^t$  は透過中性子の波数ベクトルである。反射率、透過率を  $R$ 、 $T$  とすると、

$$R(k_1) = \frac{\sin \theta_1 - n \sin \theta_t}{\sin \theta_1 + n \sin \theta_t}, \quad (2.4.8)$$

$$T(k_1) = \frac{2 \sin \theta_1}{\sin \theta_1 + n \sin \theta_t} \quad (2.4.9)$$

ここに、 $\theta_1$  は微小入射角度で、 $\theta_t$  は入射角度に対応する透過角度である。

実際に表面には粗さがあるため、ポテンシャルの  $V_1$  に関する摂動を考えなければならない。よって、時間逆転状態という固有状態 2 を次のように定義する。

$$\psi_2(r) = \begin{cases} C[e^{ik_2 \cdot r} + R^*(k_2')e^{ik_2' \cdot r}], \\ CT^*(k_1)e^{ik_2 \cdot r}, & z < 0 \end{cases} \quad (2.4.10)$$

ここに、 $-k_2$  は入射中性子の波数ベクトルで、 $-k_2'$  は反射中性子の波数ベクトルで、 $-k_1$  は透過中性子の波数ベクトルである。図にラフネス表面での中性子の伝播を示す。

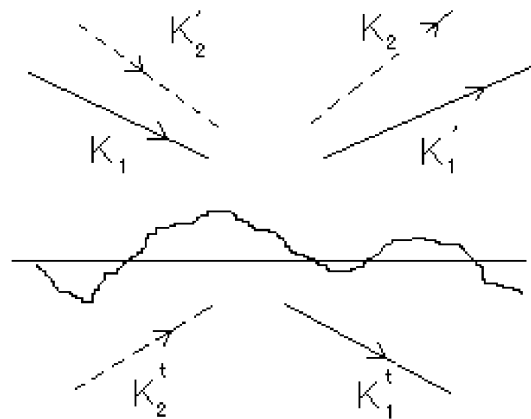


図5 ラフネスの表面

DWBA原理 (distorted-wave Born approximation) によると、固有状態 1 と固有状態 2 の間に散乱行列  $T$  は次式のようになる。

$$\langle 2|T|1 \rangle = \langle \tilde{\psi}_2|V_1|\Phi_1 \rangle + \langle \tilde{\psi}_2|V_2|\psi_1 \rangle \quad (2.4.11)$$

そして、式 (2.4.11) から、反射の断面積は

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{|\langle 2|T|1 \rangle|^2}{16\pi^2|C|^4} \quad (2.4.12)$$

と表される。

$\langle \tilde{\psi}_2|V_1|\Phi_1 \rangle$  は  $A$  と、 $\langle \tilde{\psi}_2|V_2|\psi_1 \rangle$  は  $B$  とすると、

ここで、Bは波動の量であるから、式(2.4.11)は下式の様に二つの部分に分けられる。

$$\langle |A+B|^2 \rangle = |A+\langle B \rangle|^2 + |\langle BB^* \rangle - \langle B \rangle|^2 \quad (2.4.13)$$

ここに、式の左の第一項は鏡面反射を、第二項は散漫散乱を表す。

式(2.4.12)と式(2.4.13)を整理し、最後に、散漫散乱の断面積は

$$S(q_z) = \frac{\exp\left\{-\left(q_z'\right)^2 + \left(q_z''\right)^2 \sigma^2 / 2\right\}}{\left|q_z'\right|^2} \iint_0^L dX dY \left(e^{i q_z' C(X,Y)} - 1\right) e^{i(q_x X - q_y Y)} \quad (2.4.14)$$

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{diff} = (L_x L_y) \frac{\left|k_0^2(1-n^2)\right|^2}{16\pi^2} |T(k_1)|^2 |T(k_2)|^2 S(q_z) \quad (2.4.15)$$

となる。

ここに、 $L_x L_y$ : 薄膜上の照射面積、 $n$ : 屈折率、 $T(k)$ : フレネル透過係数、散乱因子  $S(q)$ : 相関関数  $C(X,Y)$  に関する Fourier 積分、 $q_z'$ : 薄膜内の散乱ベクトル、 $q_x, q_y$ : 空気中 x 方向と y 方向のベクトル。

## 2.5 測定モデル

薄膜による散漫散乱の測定は、薄膜、検出

器の角度関係を変えて散乱中性子を測定することにより行われる。散漫散乱は鏡面反射の周囲に現れるものなので、ある意味では、この空間のどこをどのように測定してもよい。これにより、スキャンのモデルは二つがある。

### 2.5.1 検出器スキャンのモデル

中性子の散漫散乱を解析するため、多く用いられるのは検出器スキャンである。すなわち、薄膜に対する入射角度を固定しておいて散乱角度を（つまり検出器を）変化させて走査する。検出器スキャンの配置を図6. aに示す。

### 2.5.2 ロッキングスキャンのモデル

微小角度についての散漫散乱の測定や、鏡面反射と散漫散乱においてバックグラウンドの分離のため、ロッキングスキャンがよく使われる。ロッキングスキャンは、入射中性子も検出器も固定して、照射される薄膜のみを回転させて測定する。つまり、入射角度と散乱角度を合わせると定数になる。ロッキングスキャンの配置を図6. bに示す。

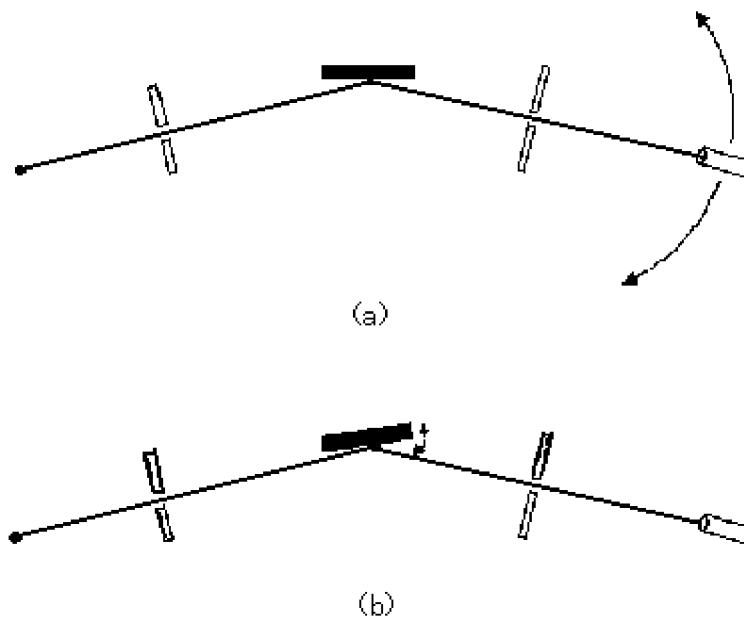


図6 測定モデル配置図(a)検出器スキャンのモデル (b)ロッキングスキャンのモデル



2.5.3 測定の入力パラメーター

Sinhaによれば、散漫散乱の断面積は式(2.4.14)と式(2.4.15)のように記述される。実際に様々な角度を入力するパラメーターとして散漫散乱の解析に導入した。よって、散漫散乱強度は<sup>6)</sup>

$$(I_2 / I_1)_{diff} = \frac{k_1^3}{8\pi^2 \theta_1} |1 - n^2|^2 |t_r(\theta_1) t_r(\phi_1)|^2 S(q_z') \delta\phi_1 \quad (2.5.1)$$

のように書き直される。ここに、散乱因子は

$$S(q_z') = \frac{\exp\left\{-\left[(q_z')^2 + (q_z^s)^2\right] \sigma^2 / 2\right\}}{|q_z'|^2} \times \int_0^\infty dR \cos(qR) \left[ \exp\left\{|q_z'|^2 \sigma^2 C(R)\right\} - 1 \right] \quad (2.5.2)$$

透過率  $t_r(k_1)$  は

$$t_r(k_1) = \frac{2\theta_1}{\theta_1 + \theta_2} \exp\left[ \frac{1}{2} k_1^2 \sigma_1^2 (\theta_1 - \theta_2)^2 \right] \quad (2.5.3)$$

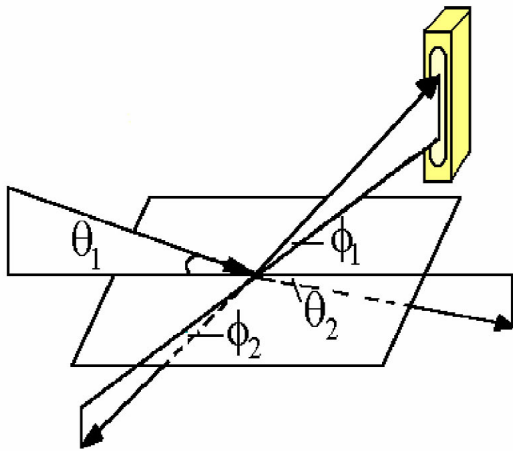


図7 入力パラメーターの配置図

図7に示すように、 $\theta_1$ は入射角度で、 $\phi_1$ は散漫散乱の角度で、 $\theta_2$ は入射角度に対する透過角度である。

I) 入射角度  $\theta_1 >$  臨界角度  $\theta_c$  の時

snell 原理により、透過角度  $\theta_t$  は次のように与えられる。

$$\theta_t = \cos^{-1}\left(\frac{1}{n} \cos \theta_1\right) \quad (2.5.4)$$

II) 入射角度  $\theta_1 =$  臨界角度  $\theta_c$  の時、透過角度  $\theta_t$  は

$$\theta_t = 0$$

となる。

III) 入射角度  $\theta_1 <$  臨界角度  $\theta_c$  の時

中性子も薄膜に侵入することがあり、

$$\cos \theta_t = \frac{e^{i\theta_1} + e^{-i\theta_1}}{2} \quad (2.5.5)$$

$$\theta_t = \cosh^{-1}\left(\frac{1}{n} \cos \theta_1\right) \quad (2.5.6)$$

透過角度  $\theta_t$  は複数となる。

2.6 薄膜による中性子の散漫散乱解析プログラム SDIFF

2.6.1 概要

鏡面反射の中性子反射率から膜厚、密度、表面・界面の粗さ等の情報が得られることができる。一方、界面の粗さの面内構造を分析するために、散漫散乱を考慮する必要がある。今回、基板上へのNiを蒸着した薄膜試料を用いて、薄膜表面の粗さの構造と散漫散乱の強度との関係を調査するためにプログラムSDIFFを開発した。

2.6.2 SDFSNの構成と機能

プログラムSDFSNは、一つの主プログラムと9つのサブルーチンから構成される。図8にSDFSNの基本構造を示す。

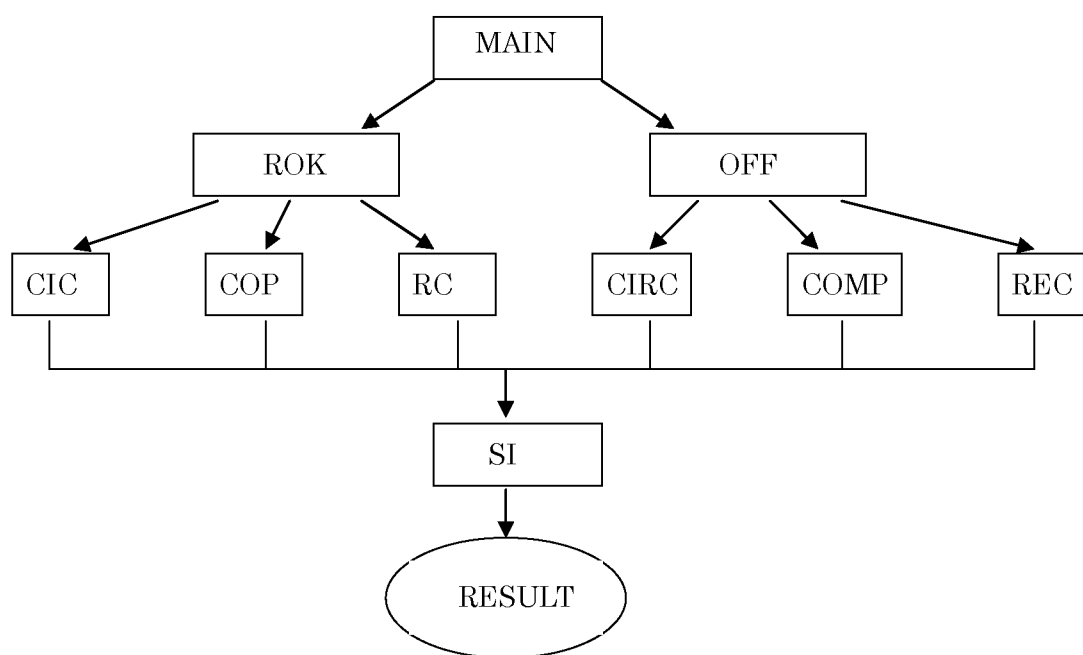


図8 プログラム SDFSNの構造図

**MAIN**：測定モデル(検出器スキャンとロッキングスキャン)を選択する。

**ROK**：ロッキングスキャンの場合、入力データを読み込む。入力データから、臨界角度を求めて散漫散乱を解析する。

**CIC**：入射角度が臨界角度と同じの場合、中性子反射率を計算する。

**COP**：入射角度が臨界角度により小さい場合、中性子反射率を計算する。

**RC**：入射角度が臨界角度により大きい場合、中性子反射率を計算する。

**OFF**：検出器スキャンの場合、入力データを読み込む。

**CIRC**：入射角度が臨界角度と同じの場合、中性子反射率を計算し、散漫散乱を解析する。

**COMP**：入射角度が臨界角度により小さい場合、中性子反射率を計算し、散漫散乱を解析する。

**REC**：入射角度が臨界角度により大きい場合、中性子反射率を計算し、

散漫散乱を解析する。

**SI**：相関関数 $C(X,Y)$ に関するFourier積分

### 2.6.3 SDIFFの入出力管理

SDIFFの入力処理としては、入力ファイルとキーボード操作を行うものである。

入力ファイル

プログラムSDIFFを実行する前に、先ず、in.datと呼ばれるファイルに表面のラフネスに関するパラメーターを入力する。入力文と入力順番を以下に示す。

1. Hurst指数 (0～1)
2. 相関距離 (単位：Å)
3. 表面の粗さ (単位：Å)
4. 中性子の波長 (単位：Å)
5. 検出器前のスリット (単位：Å)

### 2.7 計算結果

今回検出器スキャンのモデルとロッキングスキャンのモデルによって、薄膜表面のラフネスに関するパラメーターと散漫散乱の強度



との関係の検討を行った。

### 2.7.1 Hurst パラメーターの影響

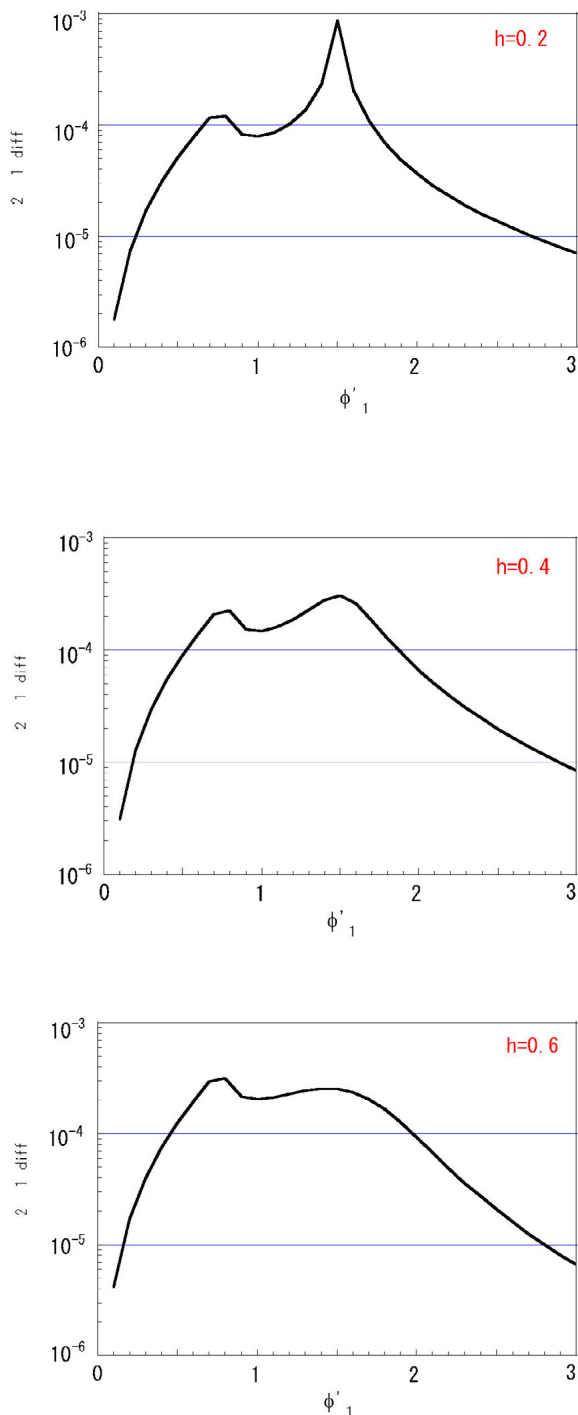


図10 検出器スキャン測定における散漫散乱中性子の断面積と h の関係

図10に検出器スキャン測定による入射角度  $1.5^\circ$  における散漫散乱中性子の断面積を示す。x座標は反射角度である。この分布において、反射角度  $= 1.5^\circ$  付近に最大値のピークが観測される。これは入射角度と反射角度が同じの場合で、鏡面反射の状態と呼ばれる。このピークは Hurst パラメーターと強く依存している。h が大きくなるにつれて、このピークはだんだん小さくなることを分る。さらに、入射角度あるい反射角度が臨界角度と同じの時、透過率 T が一番大きくなるから、Yoneda ピークと呼ばれる波高が現れる<sup>7)</sup>。今回の解析において、反射角度  $=$  臨界角度  $= 0.78^\circ$  付近に Yoneda ピークが観測される。検出器スキャン測定の場合、鏡面反射ピークより、Yoneda ピークと Hurst パラメーターの関係は弱いことを示している。

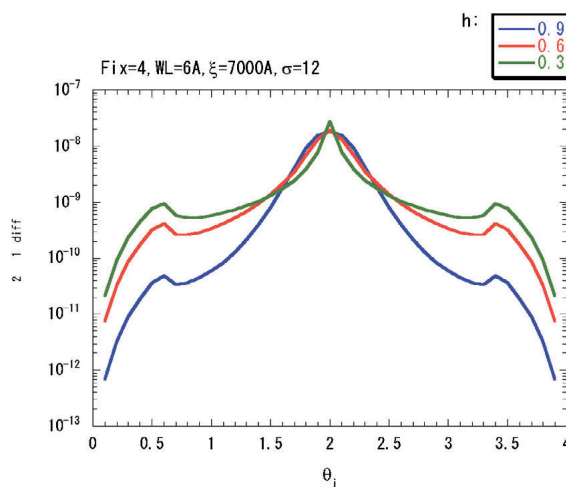
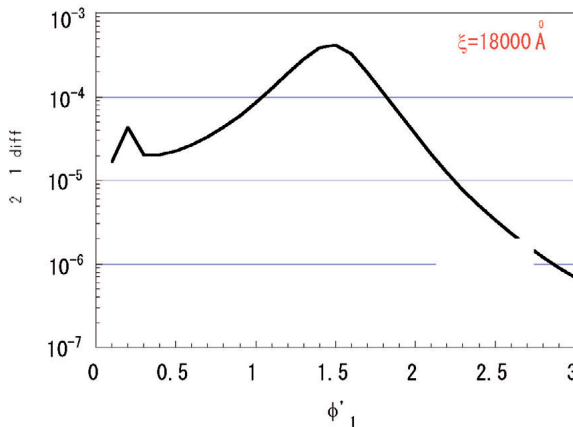


図11 ロッキングスキャン測定による散漫散乱中性子の断面積と h の関係

ロッキングスキャン測定でロッキン角度  $4^\circ$  における散漫散乱中性子の断面積を図11に示す。x座標は入射角度である。観測される Yoneda ピークは分布の左右肩の部分に相当する。

### 2.7.2 相関距離の影響

Hurstパラメーターと同じように、鏡面反射の条件に関する最大のピークは相関距離 $\xi$ の影響を受けられる。図12に大きい $\xi$ の値は鋭いピークの傾向に与えていることを示す。そして、図13にロッキングスキャン測定による散漫散乱を示すように、小さい $\xi$ の値は平坦な散漫散乱の分布に対応する。



$\xi=18000$

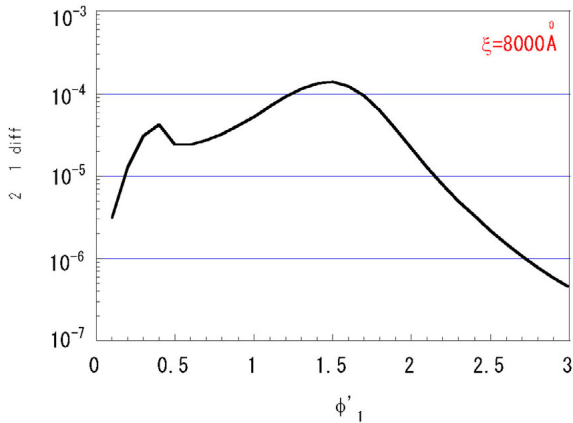


図12 検出器スキャン測定における散漫散乱中性子の断面積と $\xi$ の関係

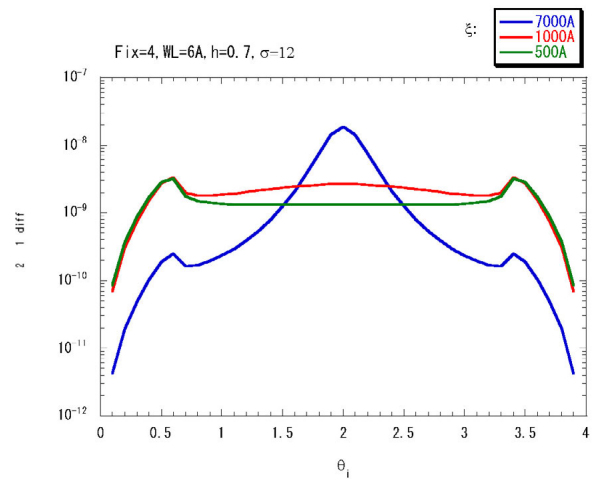


図13 ロッキングスキャン測定による散漫散乱中性子の断面積と $\xi$ の関係

### 2.7.3 表面の粗さの影響

中性子散漫散乱への影響は主に表面粗さ $\sigma$ である。図14にロッキングスキャン測定を用いて、粗さによる三つの表面での散漫散乱中性子の断面積を示す。図14を見ると、粗さが大きくなるとともに散漫散乱の強度が強くなること分る。

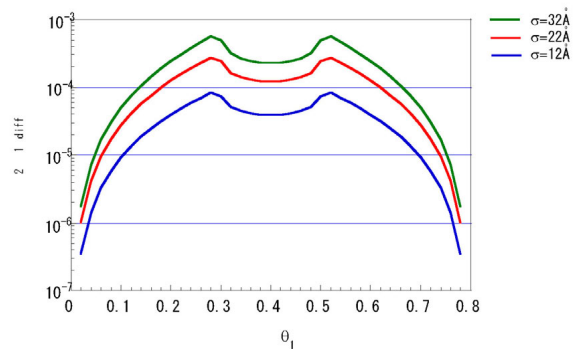


図14 ロッキングスキャン測定による散漫散乱中性子の断面積と $\sigma$ の関係

### 2.7.4 中性子波長と臨界角度の関係

中性子の波長と臨界角度の関係は、式(2.3.9)と式(2.3.11)で表される。散漫散乱の場合、入射角度=臨界角度、また反射角度=臨界角度の時、Yonedaピークが現れる。

つまり、Yonedaピークが現れる所は薄膜の臨界角度に相当する。図15に波長2Å、8Åの中性子の薄膜による散漫散乱を示す。波長2Å、8Åの入射する中性子にとって、臨界角度は0.18°と0.78°が確認できる。

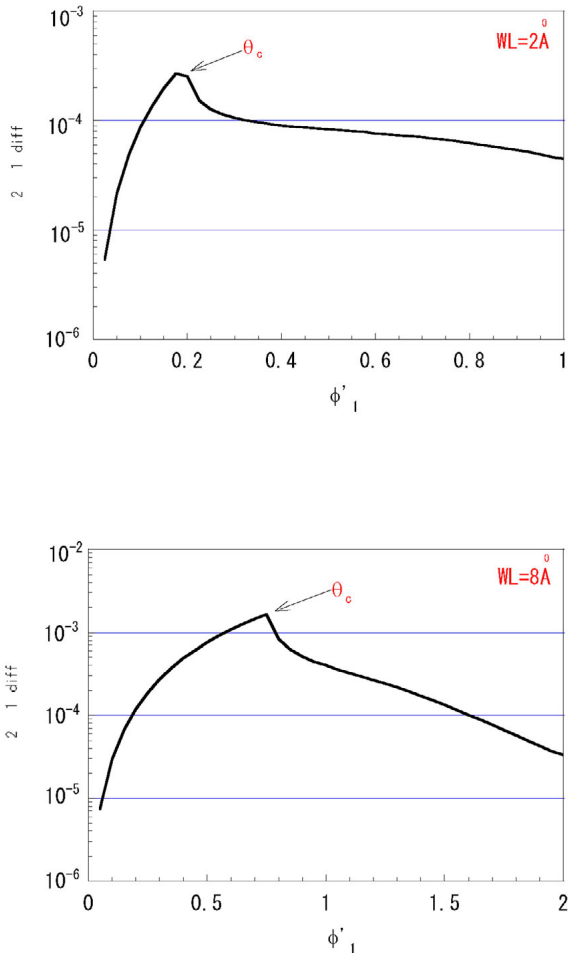


図15 中性子の波長と臨界角度の関係

### 3. 多層膜による中性子散漫散乱

#### 3.1 多層膜のラフネス

多層膜、すなわち、平行平面薄膜の重ね合せと関連して重要である。多層膜内を伝播する場合について考えると、多層膜の界面のラフネスに関する相関関数は自己相関関数と断面相関関数に区分される<sup>8,9,10</sup>。

##### 3.1.1 自己相関関数

j層面での  $z_j(\mathbf{R})=z_j+\phi_j(\mathbf{R})$  の処に層面の形状

は相関関数  $C_j(\mathbf{R})$  によって決まる。相関関数は下式のように定義される。

$$C_j(\mathbf{R}) = \langle \phi_j(\mathbf{r}) \phi_j(\mathbf{r}+\mathbf{R}) \rangle_{\mathbf{r}} \quad (3.1.1)$$

ここで、 $\mathbf{R}=(x,y)T$  ,  $\mathbf{r}$ は表面内のベクトルで、 $\langle \rangle_{\mathbf{r}}$ は  $(x,y)$ 表面の平均である。 $\phi_j(\mathbf{R})$ はラフネスによる高さの波動関数。ラフネス  $\sigma_j = \sqrt{C_j(0)}$ と表れる。自己相似的な表面に対し、相関関数は自己相関関数に記述される。

$$n_j = 1 - \lambda^2 \frac{Nb_{jcon}}{2\pi} \quad (3.1.2)$$

式中、 $\sigma_j$ はj層のrms表面粗さ、 $\xi_j$ はj層の相関距離、 $h_j$ はj層のHurstパラメーターである。

##### 3.1.2 断面相関関数

多層膜のラフネスがj層面からk層面まで伝播する場合、相関関数は下式ようになる。

$$C_{jk}(\mathbf{R}) = \langle \phi_j(\mathbf{r}) \phi_k(\mathbf{r}+\mathbf{R}) \rangle_{\mathbf{r}} \quad (3.1.3)$$

本研究では、相関関数は断面相関関数と定義される。

$$C_{jk}(R) = \sigma_{jk}^2 e^{-(R/\xi_{jk})^{2h}} \quad (3.1.4)$$

ここで、 $h$ は0から1までである。 $h$ が1に近似すると、表面は平滑な凹凸を現す。 $h$ が0に近似すると、ラフネスの凹凸は極度に激しくなる。特に  $h=1/2$  の場合、 $C_{jk}$ は指数関数と、 $h=1$ の場合、 $C_{jk}$ はガウス関数となる。パラメーター  $\sigma_{jk}$ はj層面とk層面の表面粗さの平均値で表示される。

$$\sigma_{jk} = \sigma_j \sigma_k e^{-|z_j - z_k| \xi_z} \quad (3.1.5)$$

$$\xi_{jk} = \sqrt{\xi_j \xi_k} \quad (3.1.6)$$

ここで、 $z_j$ は表面からj層面までの深さである。 $\xi_z$ は多層膜の垂直相関性を描く相関長さである。

### 3.1.3 多層膜の垂直相関性

多層膜は単一の表面ではなく、たくさんの平行平面薄膜を重ね合せて構成されている。多層膜作製技術によって、基板からのラフネスの伝播が異なるので、界面と界面のラフネ

スが互いに影響する。これは多層膜の垂直相関性と呼ばれる。そして、相関長さ  $\xi_z$  によって、垂直相関性は四つに分られている<sup>11)</sup>。図16に多層膜の垂直相関性を示す。

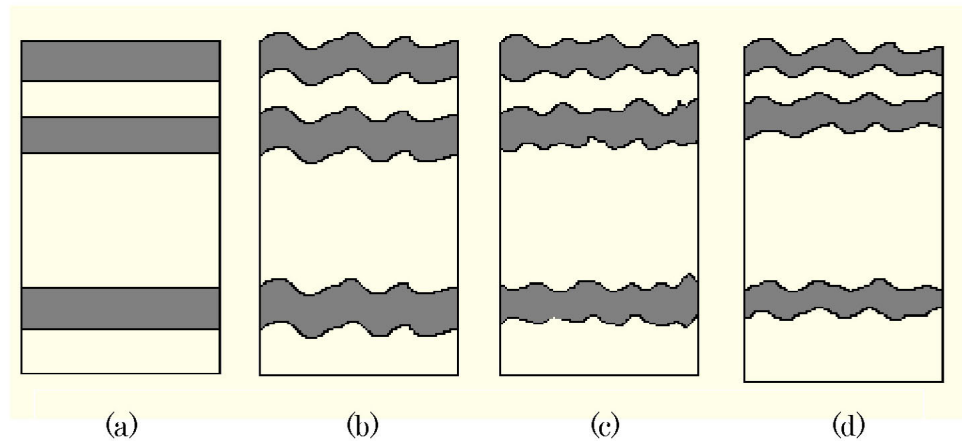


図16 多層膜のラフネスの相関性

- (a)ラフネスなし (b)完全な相関のラフネス  
(c)非相関のラフネス (d)部分的な相関のラフネス

(a)の場合、すべての層面のラフネスはゼロである。(b)の場合、すべての層面のラフネスは同じもので、すなわち、垂直方向における多層膜のラフネスは完全な相関をもち、相関長さ  $\xi_z$  は無限大になる。(c)の場合、界面と界面のラフネスは全く関係無しで、つまり、垂直方向における多層膜のラフネスは完全な非相関である。相関長さ  $\xi_z$  はゼロに近似する。(d)の場合、界面と界面のラフネスは少しずつ似通っている。よって、垂直方向における多層膜のラフネスは部分的な非相関である。相関長さ  $\xi_z$  はゼロから無限大までとなる。

## 3.2 散漫散乱の原理

### 3.2.1 多層膜における中性子反射率

以下のような多層膜を考える。多層膜の層数  $j$  は2から  $N$  までである。そして、 $j=1$  は空気と、 $j=N+1$  は基板と表示される。層面の厚さ  $d_j$  は  $d_j = z_{j+1} - z_j$  となる。それぞれの層面の

屈折率  $n_j$  は

$$n_j = 1 - \lambda^2 \frac{N b_{j\text{con}}}{2\pi} \quad (3.2.1)$$

となる。ここで、 $\lambda$  は入射中性子の波長を、 $b_{j\text{con}}$  は  $j$  層面に関する *r*coherent な散乱半径を表わす。Fresnel 原理によると、界面  $j$  の反射係数と透過係数は<sup>12)</sup>

$$r_{j,j+1} = \frac{(k_{z,j} - k_{z,j+1})}{(k_{z,j} + k_{z,j+1})} \quad (3.2.2)$$

$$t_{j,j+1} = \frac{2k_{z,j}}{(k_{z,j} + k_{z,j+1})} \quad (3.2.3)$$

となる。 $k_{z,j}$  は  $z$  方向における多層膜内の波数は、以下のように表示される。

$$k_{z,j} = k_i \sqrt{n_j^2 - \cos^2 \alpha_i} \quad (3.2.4)$$

ここで、 $\alpha_i$  は入射角度である。入射中性子の波数を  $k_i$ 、反射中性子の波数を  $k_r$  とすると、波数は次の様子で書ける。

$$k_i = k_f = 2\pi / \lambda$$

漸化式から、透過振幅と反射振幅の関係は次の通りとなる<sup>10)</sup>。

$$R_{j+1} = \frac{1}{t_{j+1,j}} \{ T_j r_{j+1,j} e^{-i(k_{z,j+1} + k_{z,j})z_j} + R_j e^{-i(k_{z,j+1} - k_{z,j})z_j} \} \quad (3.2.5)$$

$$T_{j+1} = \frac{1}{t_{j+1,j}} \{ T_j e^{i(k_{z,j+1} - k_{z,j})z_j} + R_j r_{j+1,j} e^{i(k_{z,j+1} + k_{z,j})z_j} \} \quad (3.2.6)$$

振幅比Xは<sup>15)</sup>

$$X_j = \frac{R_j}{T_j} = e^{-2ik_{z,j}z_j} \frac{r_{j,j+1} + X_{j+1} e^{2ik_{z,j}z_j}}{1 + r_{j,j+1} X_{j+1} e^{2ik_{z,j}z_j}} \quad (3.2.7)$$

となる。もし、半無限の基板を仮定すれば、境界条件によると、 $R_{N+1}=0$ 、 $T_1=1$ である。

### 3.2.2 DWBAによる散漫散乱

1988年のSinhaによるDWBA理論の導入後、薄膜での散漫散乱に関する研究は著しく進展している。1993~1997の間には、多層膜の取り扱いに関心が向けられ、Holyら、de Boerら<sup>13,14,15)</sup>が精力的にDWBAによる散漫散乱の定式化を行っている。本研究では、Holyらの散漫散乱の定式化に基づいて、多層膜による中性子散漫散乱の解析に応用する。

第一摂動理論によると、平面による入射波と出射波に関する固有状態は下式のように定義される。

$$|\psi_i(r)\rangle = T_i(z) e^{ik_i(z)r} + R_i(z) e^{ik'_i(z)r} \quad (3.2.8)$$

$$|\psi_f(r)\rangle = T_f(z) e^{ik_f(z)r} + R_f(z) e^{ik'_f(z)r} \quad (3.2.9)$$

図17に $k_i$ 、 $k'_i$ と $k_f$ 、 $k'_f$ はそれぞれの固有状態における入射波数、散乱波数を表わす。

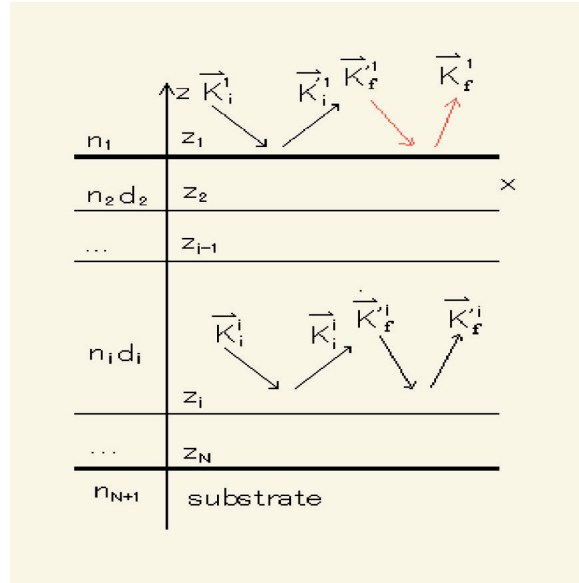


図17 多層膜による入射波数と散乱波数

表面のラフネスの影響を受けるため、式(3.2.9)に対する時間反転態も以下のように定義される。

$$|\tilde{\psi}_f(r)\rangle = T_f^*(z) e^{ik_f^*(z)r} + R_f^*(z) e^{ik'_f(z)r} \quad (3.2.10)$$

そして、散漫散乱の断面積を求めるため、以上の定義された固有状態を用いて、散乱行列 $V_{if}$ を導入する。

まず、散乱の断面積と散乱行列 $V_{if}$ の関係は以下のように示す。

$$d\sigma = \langle |V_{if}|^2 \rangle / (16\pi^2) d\Omega \quad (3.2.11)$$

散乱行列 $V_{if}$ は散乱ポテンシャル $V(r) = K^2 |1 - n(r)^2|$ を含んでいる。ここで、 $K = 2\pi / \lambda$ は真空における波数である。DWBAの原理の核心は散乱ポテンシャル $V(r)$ が2つの部分に分かれるということ、すなわち、 $V = V^{(0)} + V^{(1)}$ である。 $V^{(0)}$ は非摂動系を、つまり、平行平面薄膜を重ね合せている多層膜を表示する。一方、表面のラフネスのため、 $V^{(1)}$ は摂動系を表わす。以上の近似によると、散乱行列は

$$V_{if} = V_{if}^{(0)} + V_{if}^{(1)} = \left\langle \tilde{\psi}_f \left| V^{(0)} \right| \phi_1 \right\rangle + \left\langle \tilde{\psi}_f \left| V^{(1)} \right| \psi_i \right\rangle \quad (3.2.12)$$

ここで、 $\phi_1$ は固有状態 $\Psi_i$ に対する入射波である。

摂動系における波動場 $|\Psi_i\rangle, |\tilde{\Psi}_f\rangle$ は振幅 $T_{n,j}, R_{n,j}(n=i,f)$ で平面波を表わす。ここで、 $T_{m,j}, R_{m,j}$ は層面 $j$ で固有状態 $m$ における透過振幅と反射振幅である。波数は図17に示す。

式(3.2.11)に示す断面積は $|\Psi_i\rangle$ から $|\tilde{\Psi}_f\rangle$ までの散乱確率に正比例する。

行列の要素 $V_{if}^{(1)}$ はすべての界面の寄与を合計することである。

$$V_{if}^{(1)} = \sum_{j=1}^{N+1} W_j \quad (3.2.13)$$

または、

$$W_j = K^2(n_j^2 - n_{j+1}^2)G_{j+1}^2 \hat{F}^j G_{j+1}^1 \quad (3.2.14)$$

ここで、 $G$ は下式のように透過振幅と反射振幅の組み合わせるものである。

$$G_j^m = \begin{pmatrix} T_{m,j} \\ R_{m,j} \end{pmatrix} \quad m=0, \dots, 3 \quad (3.2.15)$$

あるいは、 $G_j^0 = T_{i,j} T_{f,j}, G_j^1 = T_{i,j} R_{f,j}, G_j^2 = R_{i,j} T_{f,j}, G_j^3 = R_{i,j} R_{f,j}$

となる。そして、界面ラフネスに関する任意の行列は以下ようになる。

$$\hat{F}^j = \begin{pmatrix} F^j(q_{j+1}^0) & F^j(q_{j+1}^2) \\ F^j(q_{j+1}^1) & F^j(q_{j+1}^3) \end{pmatrix} \quad (3.2.17)$$

ここで、波数 $q$ は

$$q_j^0 = k_{i,j} + k_{f,j}, \quad q_j^1 = k_{i,j} - k_{f,j}, \quad q_j^2 = -q_j^1, \quad q_j^3 = -q_j^0 \quad (3.2.18)$$

式(3.2.14)を用いて、式(3.2.11)から散乱の断面積を下式のように書ける。

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = Cov(V_{if}^{(1)}, V_{if}^{(1)}) / 16\pi^2$$

$$= \sum_j \sum_k^{N+1, N+1} Cov(W_j, W_k) / 16\pi^2 \quad (3.2.19)$$

ここで、 $Cov(a,b) = \langle ab^* \rangle - \langle a \rangle \langle b \rangle^*$ は任意量 $a, b$ の共分散である。最後に、式(3.2.19)を整理すると、

$$\left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{diff} = \frac{Ak_1^2}{8\pi^2} \sum_{j,k=1}^N (n_j^2 - n_{j+1}^2)(n_k^2 - n_{k+1}^2)^* \times \sum_{m,n=0}^3 G_j^m G_k^n \times \exp\{-0.5[(q_{z,j}^m \sigma_j + (q_{z,k}^n \sigma_k)^2)]\} S_{jk}^{mn}(q_x) \quad (3.2.20)$$

散乱因子 $S$ は

$$S_{jk}^{mn}(q_x) = \frac{1}{q_{z,j}^m q_{z,k}^n} \int_0^\infty dX \{ \exp[q_{z,j}^m q_{z,k}^n C_{jk}(X)] - 1 \} \times \cos(q_x X) \quad (3.2.21)$$

のように記述することができる。

### 3.3 測定方法

散漫散乱の特性を検討するため、三つのスキャンモデルを行う。図18に $q_x$ - $q_z$ の空間関係によるスキャンモデルを示す。 $q_z$ と $q_x$ を下式のように表わす。

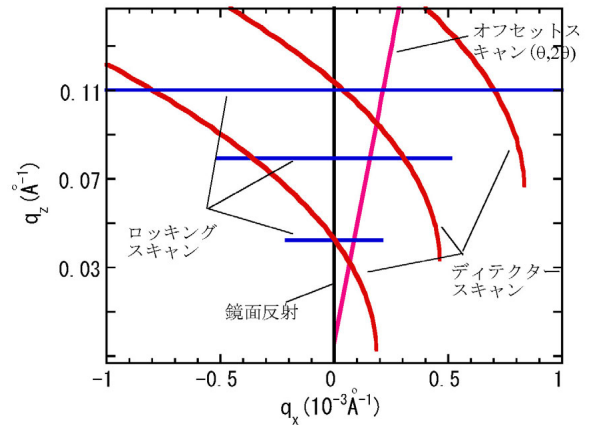


図18  $q_x$ - $q_z$ の空間関係によるスキャン

$$q_x = k_i(\cos \alpha_f - \cos \alpha_i) \approx k_i / 2(\alpha_i - \alpha_f) \Phi \quad (3.3.1)$$

$$q_z = k_i(\sin \alpha_i + \sin \alpha_f) \approx k_i \Phi \quad (3.3.2)$$

ここで、 $\alpha_i$ は入射角度で、 $\alpha_f$ は反射角度であ



る。散乱ベクトルの表面に垂直な成分 ( $q_z$ ) と水平な成分 ( $q_x$ ) の相関性を図19に示す。

そして、図18に示すようなスキャンを説明する。

・鏡面反射

鏡面反射の場合、入射角度と反射角度は同じである ( $\alpha_i = \alpha_f$ )。つまり、 $q_x=0$ で、 $q_z$ 座標に沿って測定する。鏡面反射を利用して、多層膜による中性子の反射率を求めることができる。

・ディテクターズキャン

ディテクターズキャンは、多層膜に対する入射角度  $\alpha_i$  を固定しておいて散乱角度  $\Phi$  を

変えて走査する。

・ロッキングスキャン

検出器を固定して多層膜のみを回転させて測定する。つまり、入射角度  $\alpha_i$  を変えて散乱角度  $\Phi = \alpha_i + \alpha_f$  を固定する。この場合、 $q_z$  は常数に近似し、 $q_x$  における付近の周りに走査する。

・オフセットスキャン

オフセットスキャンと鏡面反射はほとんど同じである。ただし、オフセットスキャンの場合、入射角度と微小な偏差の位置に、スキャンが行われる。つまり、入射角度  $\alpha_i = \alpha_f + \delta\theta$  である。ここで、 $\delta\theta$  はオフセット角度と呼ばれる。

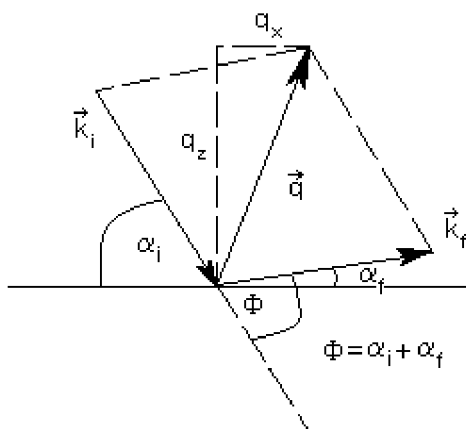


図19 散乱ベクトルの配列

3.4 多層膜による中性子の散漫散乱解析プログラム MDIFFによる計算例

多層膜による中性子散漫散乱の解析を行うことを目的として、Holyの外延的なDWBA原理を用いて、多層膜における散漫散乱の解析モデルを構築した。このモデルについての理論計算による検討を行った。また、原研JRR3原子炉において得たロッキングスキャン実験の結果と理論計算の比較を行った。

3.4.1 共鳴散乱ピーク

多層膜の垂直方向におけるラフネスが部分

的な相関性になる場合、多層膜の間の干渉の影響のため、図20にディテクターズキャンによる周期的な振動を現れていることを観察した。この最大値の散漫散乱は共鳴散乱 (Resonant diffuse scattering) と呼ばれる。今回、計算した三つの多層膜は全ての20層のNi/Ti多層膜である。しかし、多層膜の周期はそれぞれの20Å、100Å、200Å。多層膜の周期Dは以下のように示す。

$$D = d_1 + d_2$$

ここで、 $d_1$ はNi層の厚さで、 $d_2$ はTi層の厚さである。そして、共鳴散乱と多層膜の周期D

の関係は下の式に表わされる。

$$q_z = n2\pi / D = k_l(\sin a_f + \sin a_i),$$

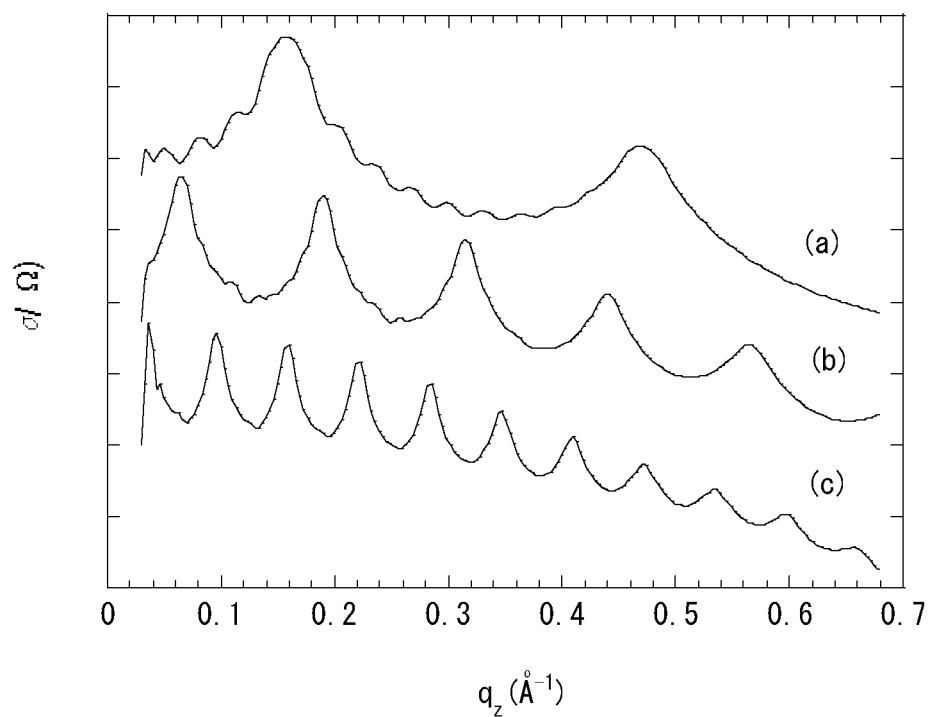


図20 多層膜の周期Dに対する共鳴散乱ピーク (a)N=20、D=40Å (b)N=20、D=100Å  
(c)N=20、D=200 Å

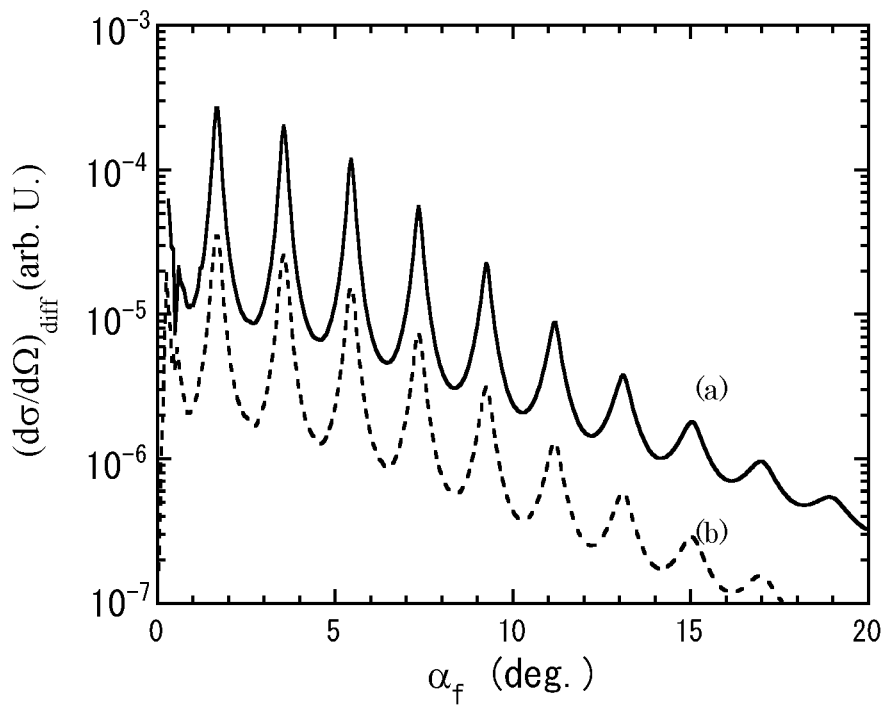


図21 多層膜による共鳴散乱の分布。多層膜の周期は $100\text{\AA}$ である。 $h_j=0.5$ 、 $\sigma_j=12\text{\AA}$ 、 $\xi_j=12\text{\AA}$  (a)層数 $N=40$ 、(b)層数 $N=20$

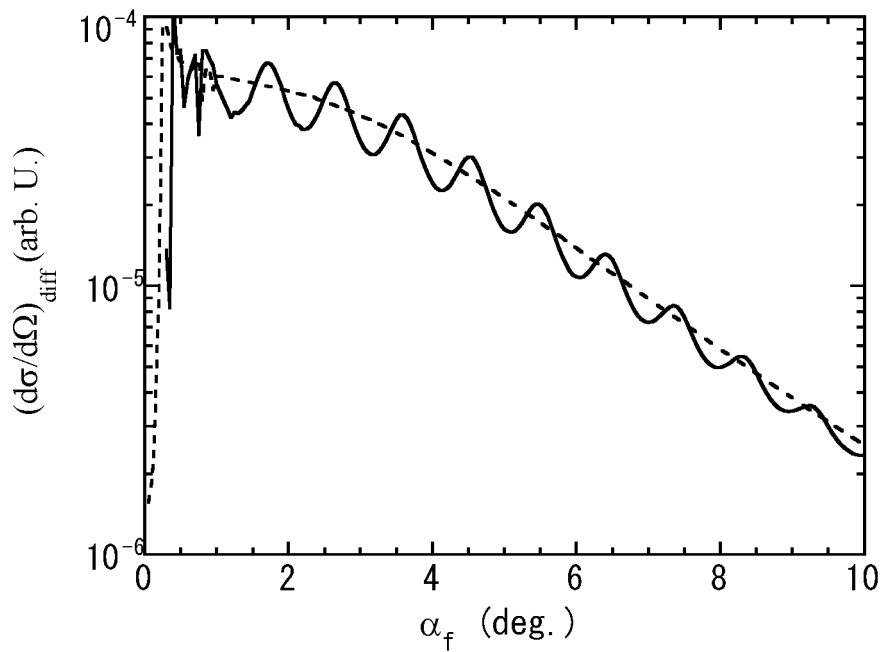


図22 多層膜の界面における部分な相関性と非相関性による散乱散漫分布

$$q_x = k_i(\cos \alpha_f - \cos \alpha_i) \quad (3.5.1)$$

ディテクタースキャンにおいて、共鳴散乱と Bragg ピークが一致することを示す。共鳴散乱と Bragg ピークは同じ  $q_z$  値を有する。しかし、 $q_x$  値にとって、Bragg ピークの場合、入射角度と反射角度が同じだから、 $q_x$  値はゼロになる。一方、共鳴散乱ピークの場合、 $q_x$  値はゼロではない。よって、共鳴散乱は準 Bragg ピークと呼ばれることもある。

図21に同じの周期で、異なる層数での多層膜による散漫散乱の分布を示す。界面のラフネスに関するパラメータはすべて同じ数値を設置する。それは  $h_j=0.5$ 、 $\sigma_j=12\text{\AA}$ 、 $\xi_j=12\text{\AA}$  である。図21を見ると、多層膜の層数は散漫散乱の強度への影響を与える<sup>16)</sup>。

多層膜の界面相関性はディテクタースキャンへの影響を検討するために、今回、層数

$N=40$ 、周期  $D=100\text{\AA}$  の Ni/Ti 多層膜を用いて、計算、検討を行った。図22に非界面相関の多層膜 (solid line) と部分的な界面相関の多層膜 (dash line) による散漫散乱の断面積を示す。ラフネスの存在は連続の界面の間に位相の差異に保ち、不規則な極大のピークを現す原因となる。垂直方向は相関性になる場合、多層膜の界面が相互に等角性になり、図21のように周期的な共鳴ピークを表わす。一方、垂直方向は非相関性になる場合、つまり、多層膜の界面におけるラフネスはそれぞれの異なった形になる。このような多くの界面を取り扱くと、平均的な相互作用の影響のため、振動の特性が消える。よって、図22に示すように、ディテクタースキャンの条件で、非界面相関の多層膜による散漫散乱は、周期的な共鳴ピークを現しておらず、散漫散乱の断面

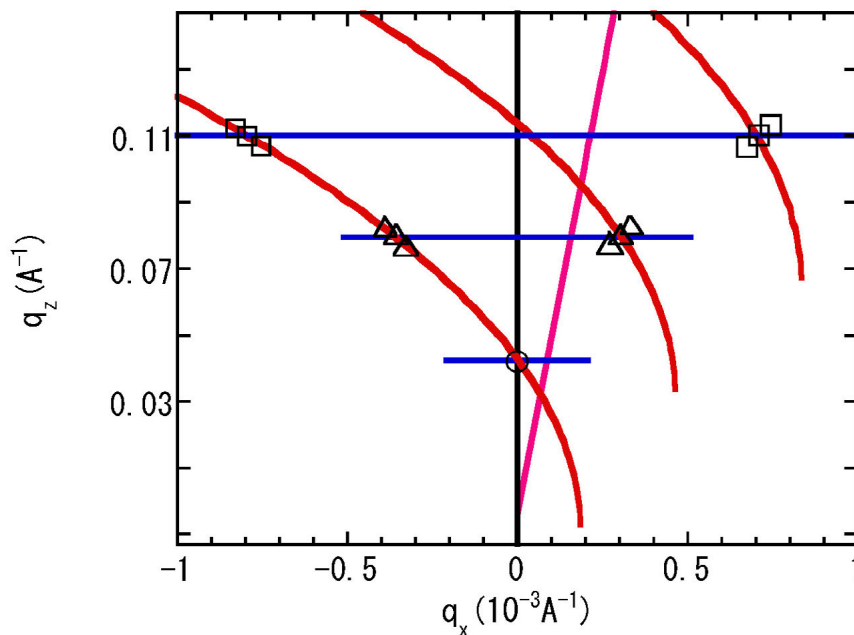


図23 多層膜の相互格子空間において散漫散乱の特徴的位置。ロッキングスキャンに観測されるピークは△と□に現れる。

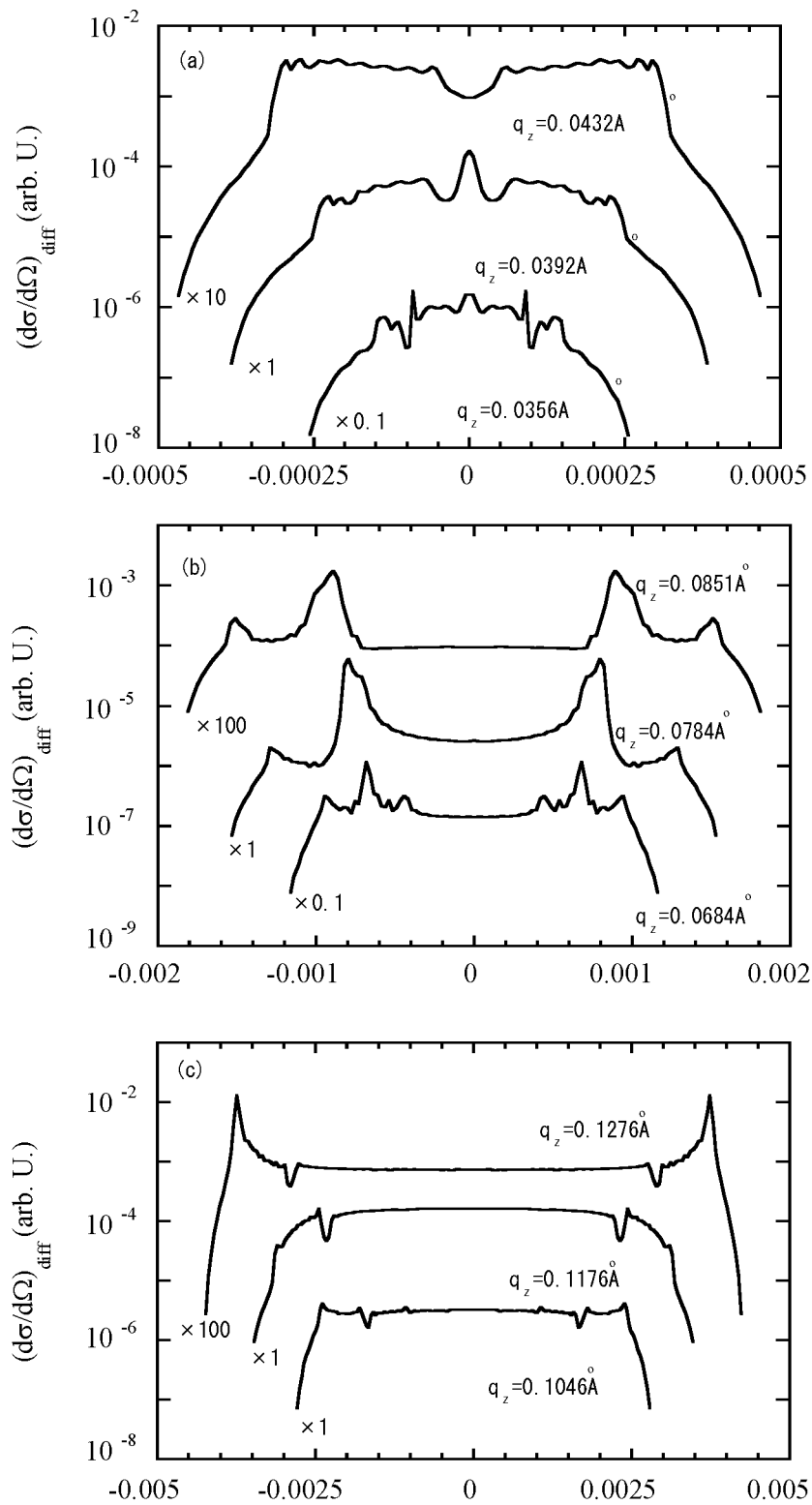


図24 DWBA原理によるロッキングスキャンの散漫散乱の分布 (a)第一Braggピーク  $q_x=0.0392\text{\AA}^{-1}$  (b)第二Braggピーク  $q_x=0.0784\text{\AA}^{-1}$  (c)第三Braggピーク  $q_x=0.1176\text{\AA}^{-1}$

積は平坦的かつ無特徴の傾向となる<sup>17)</sup>。

### 3.5.2 ロッキングスキャンによる散漫散乱

ロッキングスキャンによる散漫散乱実験は原研JRR-3において行った。原子炉から導き出す冷中性子を利用し、ゴニオメータにセットした試料に照射する。今回、基板上にNi/Tiを成膜した多層膜を試料として測定する。また、検出器の前にスリットを設置する。

$q_x$ 値の全範囲にロッキングスキャンによる散漫散乱のバックグラウンドを観測することができる。特に近距離の空間のロッキングにより、散漫散乱の特性がよく確認される。今回、図23に第一の( $q_x=0.0392\text{\AA}$ )、第二の( $q_x=0.0784\text{\AA}$ )及び第三のピーク( $q_x=0.1176\text{\AA}$ )に対応する相互格子点でロッキングスキャンによる散漫散乱の計算を行った。その結果を図24に示す。

ロッキングスキャンにとって、顕著な特徴はスキャン軌跡が図18に示すように $q_z=0$ かつ $q_x$ に沿った相互格子点に対応する領域である。図24(a)の第一Braggピーク( $q_x=0.0392\text{\AA}$ )に対応するロッキングスキャンによる散漫散乱分布の中心には顕著なピークがあるのに対し、図24(a)、(c)の散漫散乱分布にはこのようなピークは現れていない。その原因は以下のように考えられる。 $q_x$ 値が第一Braggピークに近づく場合、中性子の散乱分布において鏡面散乱は主要なものであるため、中心のピークが現れている。一方、 $q_x$ 値が第二、第三Braggピークに近い場合、散漫散乱(非鏡面反射)の強度は近似的に鏡面反射と同様になる。また、鏡面反射に比べると、散漫散乱は

$q_x$ 方向に沿って広がっている。大きい $q_x$ 値の場合、鏡面反射よりも散漫散乱が強いため、中心のピークは現れていない<sup>9)</sup>。

図24(b)では第二Braggピーク( $q_x=0.0784\text{\AA}$ )に対応するロッキングスキャンによる散漫散乱分布に左右の肩が現れ始める。これはYonedaピークである。入射角度 $a_i$ また反射角度 $a_r$ が臨界角度 $a_c$ と同じ時、透過率 $T_j$ が最大値になるため、Yonedaピークを観測することができる。また、 $q_x$ 値が第二、第三Braggピークに近づくとき、入射角度 $a_i$ また反射角度 $a_r$ は第一Braggピークの角度と等しくなり、ロッキングスキャンによる対称性が観測される<sup>21)</sup>。この対称性は図24(b)での二つの尖鋭なピークに(図23に△が表示される所)、図24(c)での二つの谷(図23に□が表示される所)に表れる。 $2a_1$ (ロッキング角度) $=2a_2$ (第二Braggピーク角度)のとき、二つの尖鋭なピークは $a_r=2a_i$ かつ $a_i$ に沿って現れる。また、図24(c)に第三Braggピークによる二つの谷も動力学的影響を受け、強度の減少を引き起こす。

今回、原研JRR3においてロッキングスキャンによる実験を行った。冷中性子導管から導出する中性子の波長は $3.8\text{\AA}$ である。測定される試料は20層のNi/Tiの多層膜で、多層膜の周期 $D$ は $100\text{\AA}$ である。図25にDWBAによる計算値と実験値を示す。図25(a)、(b)、(c)はそれぞれの第一Braggピーク( $q_x=0.03030\text{\AA}$ )と第二Braggピーク( $q_x=0.032032\text{\AA}$ )と第三Braggピーク( $q_x=0.064062\text{\AA}$ )による散漫散乱分布である。図25(a)と(b)の場合、DWBAの計算値と実験値が一致することを示す。



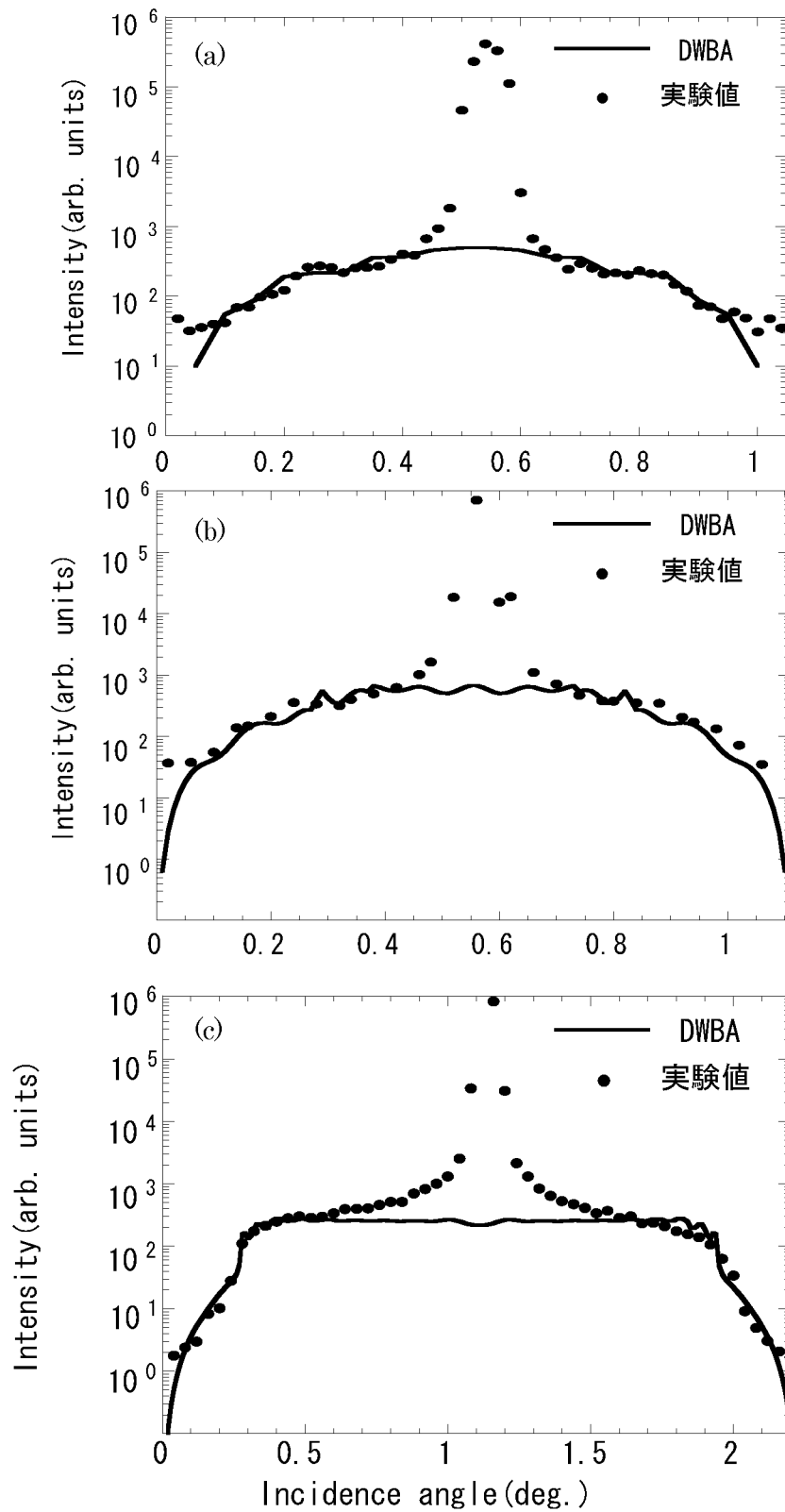


図25 実験値と理論値に散漫散乱の強度 (a)第一Braggピーク  $q_z=0.03030\text{\AA}^{-1}$ 、  
 (b)第二Braggピーク  $q_z=0.032032\text{\AA}^{-1}$ 、(c)第三Braggピーク  $q_z=0.064062\text{\AA}^{-1}$

しかし、バックグラウンドの影響のため、分布の両端に測定されるべき中性子がバックグラウンドに埋もれて、実験値における散漫散乱の分布は確認できなかつた。一方、図25(c)の場合、散漫散乱の分布の左右肩が顕著である。これはYonedaピークに相当する。

Yonedaピークは計算値と実験が合っているのに対し、中央部にはBWBAによる計算値は過小評価していることを表している。

#### 4. おわりに

中性子ビームによる物質の配列・運動に関する構造研究は、1940年代からの原子炉の開発とともにスタートし、Clifford G. Shull (当時オークリッジ国立研究所) とBertram N. Brockhouse (当時チョークリバー研究所) らのパイオニア的な研究に端を発し、彼らの1994年のノーベル物理学賞に結びつき、現在、物質構造研究のユニークな手法として市民権を得ている。中性子は、原子核と直接相互作用し、原子配置が調べられる(同位体の違いが分かる。軽原子に敏感)、電氣的に中性で透過性が高い、磁性に敏感である、エネルギーの遣り取りの過程が測定できる、などの特徴があり、物性科学、生命科学さらには、構造物・部品の残留応力測定や、ラジオグラフィなどの産業応用も推進されており、農業分野への応用も期待されている。

本研究では、中性子による薄膜及び多層膜の表面構造研究を目的として、DWBA原理を用いた中性子の散漫散乱の解析コードの開発を行った。本コードを用いて行われる表面研究のテーマは、固体/固体、固/液、液/液、気/液と様々な表面・界面が対象となり、物質も金属薄膜、磁性薄膜、高分子薄膜から生体膜と実に広範囲である。中性子反射率法では、主として物質深さ方向の原子密度分布情報が得られるが、本稿は、特に表面形状(粗さ)に焦点を当てた研究開発である。物質の表面・界面の粗さは、フラクタルな自己相似

性を有しており、その解析モデルは1988年のSinhaによるDWBA原理導入が基礎となっている。理論モデルに基づいて散漫散乱の特性を調べ、小さい $q_z$ 値の範囲において計算値と実験値が一致することを確認した。今後、 $q_z$ 値のより大きい範囲におけるモデルを検討しコードの開発を進めるとともに、今後のJRR-3、さらにはJ-PARCを用いた表面科学研究に資することとしている。

#### 参考文献

- 1) S. K. Sinha, E. B. Sirota, S. Garoff, and H. B. Stanely, Phys. Rev. B 38, 2297 (1988).
- 2) Roger Pynn, Phys. Rev. B 45, 602 (1992).
- 3) V. W. Stone, A. M. Jonas, B. Nysten, R. Legras, Phys. Rev. B 60, 5883 (1999).
- 4) 原見 太幹・川端 祐司、「JRR-3改造炉中性子導管詳細設計」JAERI-M 85-093 (1985).
- 5) S. Yamada, T. Ebisawa, N. Achiwa, T. Akiyoshi, Annu. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ. Vol. 11(1978) 8-27.
- 6) C. Thompson, G. Palasantzas, Y. P. Feng, S. K. Sinha, J. Krim, Phys. Rev. B 49, 4902 (1994).
- 7) Y. Yoneda, Phys. Rev. 131, 2010 (1963).
- 8) T. Gu, A. I. Goidman, and M. Mao, Phys. Rev. B 56, 6474 (1997).
- 9) J. Stettner, L. Schwalowsky, O. H. Seeck, M. Tolan, W. Press, Phys. Rev. B 53, 1398 (1996)
- 10) J.-P. Schlomka, M. Tolan, L. Schwalow, O. H. Seeck, J. Stettner, and W. Press, Phys. Rev. B 51, 2311 (1995).
- 11) A. P. Payne, B. M. Clemens, Phys. Rev. B 47, 2289 (1993)
- 12) V. Holy, J. Kub?na, I. Ohlidal, K.

- lischka, and W. plotz, Phys. Rev. B 47, 15896 (1993).
- 13) V. Holy, T. Baumbach, Phys. Rev. B **49**, 10668 (1994).
- 14) V. Holy , C. Ginanini, L. Tapfer, T. Marschner, and W. Stolz, Phys. Rev. B **55**, 9960 (1997).
- 15) L. G. Parratt, Phys. Rev. 95, 359 (1954).
- 16) D. E. Savage, N. Schime, Y. -H. Phang, M. G. Lagally, J. Appl. Phys. 71, 3283 (1992).
- 17) M. kopecky, J. Appl. Phys. 77, 2380 (1995).
- 18) A. Rosenbluth, and P. Lee, Appl. Phys. Lett. **40**, 466 (1982)
- 19) V. M. Kaganer, S. A. Stepanov, and R. Köhler, Phys. Rev. B **52**, 16369 (1995).
- 20) V. M. Kaganer, S. A. Stepanov, and R. Köhler, Phys. B **221**, 34 (1996).
- 21) J. B. Kortright, J. Appl. Phys. **70**, 3620 (1991).
- 22) T. Salditt, H. M. Metzger, and J. Peosl, Phys. Rev. Lett. **73**, 2228 (1994).
- 23) M. Kardar, Physica B **221**, 60 (1996).
- 24) A. L. Barabasi, and H. E. Stanley, *Fractal Concepts in Surface Growth* (Cambridge University Press, Cambridge, England, 1995).
- 25) D. E. Savage, N. Schime, Y.-H. Phang, and M. G. Lagally, J. Appl. Phys. **71**, 3283 (1992).