

JAERI-Research
2003-031



JP0450452



多層膜による中性子散漫散乱解析コードの開発

2004年 3月

曾山 和彦・曹 斌*

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越してください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 2004

編集兼発行 日本原子力研究所

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 ・ 曹 斌*

(2003 年 11 月 7 日受理)

中性子多層膜ミラーからの散漫散乱を解析・評価するため、DWBA 理論に基づくシミュレーションコードを開発した。本コードは、ロッキングスキャン、検出器スキャン、オフセットスキャンの 3 種類の走査タイプを想定した解析モードを有している。Ni/Ti 多層膜ミラーに関して、JRR-3 でのロッキングスキャンによる実験とモデルについての理論計算との比較、検討を行った結果、DWBA 近似に基づく計算と良い一致を見た。

Development of a Simulation Code for the Neutron Diffuse Scattering
from Multilayers

Kazuhiko SOYAMA and Bin CAO*

Neutron Science Research Center
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received November 7, 2003)

We have established a simple model to analyze the diffuse neutron scattering for Ni/Ti multilayers with DWBA calculation. Three kind of scan type have been adopted to investigate the features of the scattered intensities. Good agreement between the measurement around rocking scan and the calculation following the concept of DWBA has been achieved in this paper.

Keywords : Neutron, Diffuse Scattering, Multilayer, Reflection, DWBA

* Kyushu University

目 次

1. はじめに	1
2. 薄膜による中性子散漫散乱	1
2.1 薄膜表面のラフネス	1
2.2 相関関数	3
2.3 薄膜による中性子の伝播	4
2.4 DWBA理論による散漫散乱	6
2.5 測定モデル	9
2.6 薄膜による中性子の散漫散乱解析プログラム SDIFFF	12
2.7 計算結果	15
3. 多層膜による中性子散漫散乱	20
3.1 多層膜のラフネス	20
3.2 散漫散乱の原理	22
3.3 測定方法	25
3.4 多層膜による中性子の散漫散乱解析プログラム MDIFF	27
3.5 計算結果	34
4. 結言	41
謝辞	41
参考文献	41

Contents

1. Introduction	1
2. Neutron Diffuse from Thin Film Layers	1
2.1 Roughness of Thin Film Surface	1
2.2 Correlation Function	3
2.3 Neutron Transmission for Thin Films	4
2.4 Diffuse Scattering by DWBA Approximation	6
2.5 Experimental Model	9
2.6 Thin Film Diffuse Scattering Analysis Code "SDIFFF"	12
2.7 Calculation Results	15
3. Neutron Diffuse Scattering from Multilayers	20
3.1 Roughness of Multilayer	20
3.2 Neutron Transmission for Multilayers	22
3.3 Experimental Method	25
3.4 Multilayer Diffuse Scattering Code "MDIFF"	27
3.5 Calculation Results	34
4. Conclusions	41
Acknowledgement	41
References	41

1. はじめに

近年の成膜技術や微細加工技術の進展に伴って、薄膜作製技術は格段の進歩を遂げているが、完全に平坦な薄膜表面の創製は困難で、薄膜表面には常に原子オーダーに渡るラフネスが存在している。このため、金属薄膜の全反射現象を利用して中性子を反射する全反射ミラーの場合、ラフネスの影響のため、鏡面反射の周辺、すなわち入射ビームと等角でない位置にも散漫散乱と呼ばれる微弱な散乱が観測される。また、多層膜が模擬する人工格子によるブラッグ反射ミラーにおいても、多層膜の表面・界面が完全な平坦にならないため、同様の散漫散乱が起こる。

中性子の全反射ミラー及び多層膜ミラーは、世界各国の中性子源において、中性子の輸送、分岐、収束、偏極などに広く応用され、中性子利用実験の効率を飛躍的に向上させることに役立っている。特に、人工格子の格子間隔を可変にした多層膜スーパーミラーは、大きい全反射臨界角を有しており、高性能中性子導管、中性子回折・散乱実験や即発γ線放射化分析などにおける偏極・収束素子に応用され、新たな研究領域を開拓する素子として期待されている。本研究では、多層膜スーパーミラー等を中性子ビーム収束デバイスとして応用することを目標として、その際問題となる散漫散乱による中性子強度の減少や収束ミラーの焦点でのバックグラウンドの原因を解決するため、これらを評価し、改善するための薄膜及び多層膜に関する中性子散漫散乱解析コードを開発するものである。

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、表面上のある二点の高さが、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^{1,2,3)}。

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

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。

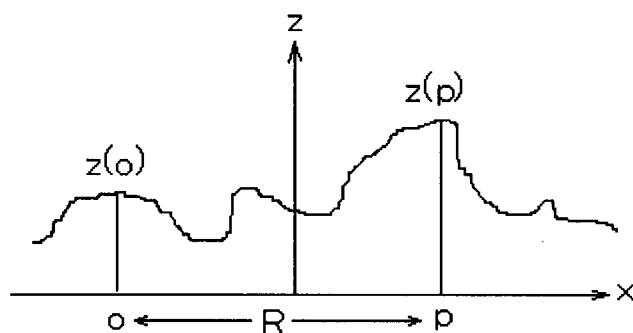


図1: 薄膜におけるラフネスの表面, $z(p)$ は表面の高さ

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。

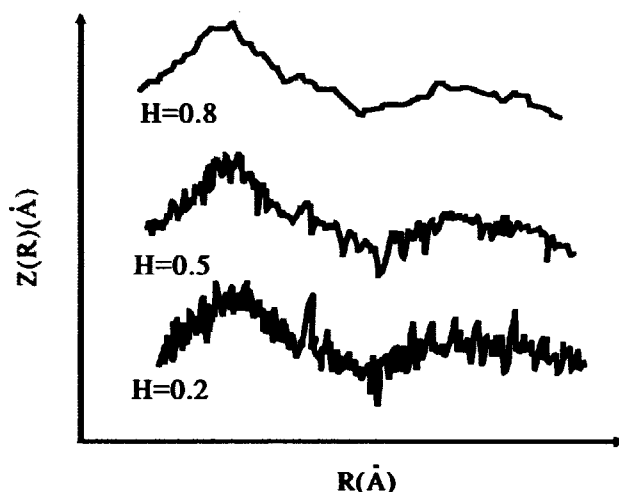


図2 Hurst パラメーターH による表面形状

・rms 表面粗さ σ と相関距離 ξ

薄膜表面のラフネスを詳しく述べるため、rms 表面粗さ σ と相関距離 ξ を導入する。rms 表面粗さ σ は表面の縦の方向におけるラフネスを表す。換え言えば、 σ 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 ξ 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。

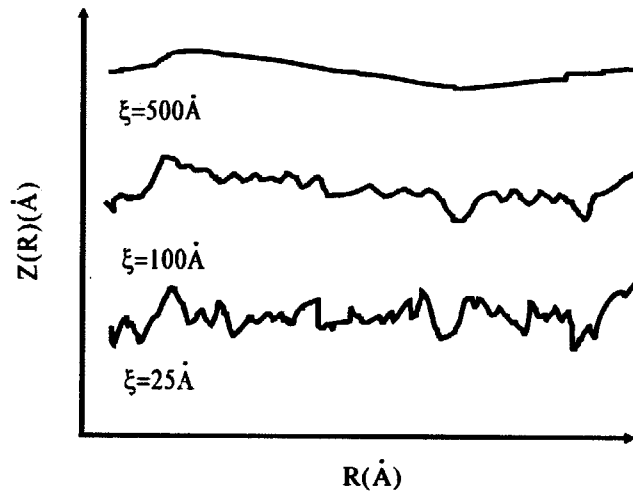


図3 相関距離 ξ による表面形状

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、 $g(R)$ は下式のように書き直す。

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

ここで、 $R \ll \xi$ の時、式 (2.2.1) が式 (2.1.2) に変換される。 ξ 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、 ξ を利用し、式 (2.1.1) から、算術平均高さは

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

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。

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

式 (2.2.1) を式 (2.2.3) に代入して、相関関数は

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

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 λ 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、

$$\varepsilon_0 = \frac{\eta^2 k_0^2}{2m} \quad (2.3.2)$$

はエネルギーである。入射中性子の波動関数

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

と表わされる。ここに m は中性子の質量で、 ε 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

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

となる。

磁界を無視し、schrödinger 方程式を helmholtz 伝播方程式に書き直す⁵⁾。

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

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

$$n^2 = \frac{k^2}{k_0^2} \quad (2.3.7)$$

のように定義される。そして、屈折率 n は⁴⁾

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

または、

$$1-n$$

は、 10^{-5} のオーダーであるから、

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

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、 θ_{tr} は $\theta_{tr} = 0$ とすると、臨界角度 θ_c は

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

と書ける。臨界角度 θ_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 (fm)	ρ (10^{28}m^{-3})	ρb (10^{13}m^{-2})	δ (10^{-6})	q_c (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 ₂ O	-1.68	3.35	-5.63	-1.43	-
Si ₂ 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。

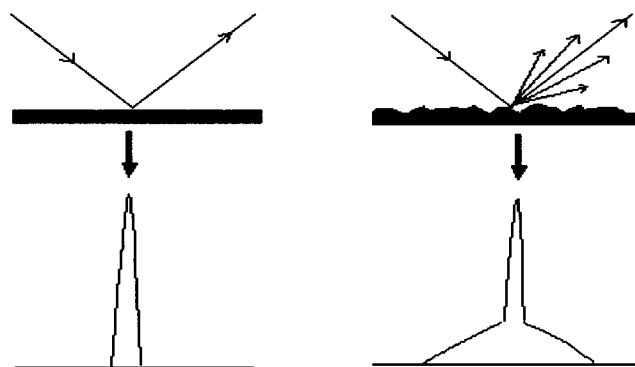


図 4 鏡面反射と散漫散乱

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¹⁾。

中性子が平面に入射すると、stationary 波動方程式は

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

$$\text{ここに、} k_0 = \frac{2\pi}{\lambda} \quad (2.4.2)$$

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

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、 θ_1 は微小入射角度で、 θ_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。

$$\psi_2(r) = \begin{cases} C[e^{ik_2 \cdot r} + R^*(k_2')e^{ik_2' \cdot r}], & z > 0 \\ CT^*(k_1)e^{ik_1 \cdot r}, & z < 0 \end{cases} \quad (2.4.10)$$

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。

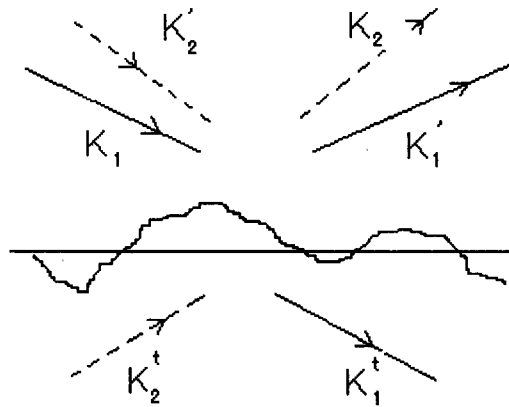


図5 ラフネスの表面

DWBA 原理(distorted-wave Bron approximation)によると、固有状態 1 と固有状態 2 の間に散乱行列 T は次式の様になる。

$$\langle 2|T|1 \rangle = \langle \tilde{V}_1 |, 1 \rangle + \langle \tilde{V}_2 |, 1 \rangle \quad (2.4.11)$$

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。

$\langle \tilde{V}_1 |, 1 \rangle$ は A と、 $\langle \tilde{V}_2 |, 1 \rangle$ 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

(2.4.14)

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

(2.4.15)

$$S(q_i) = \frac{\exp\left\{-\frac{(|q'_z|^2 + |q''_z|^2)\sigma^2/2}{|q'_z|^2}\right\}}{|q'_z|^2} \iint_0 dXdY (e^{|q'_z|^2 C(X,Y)} - 1) e^{i(q_x X - q_y Y)}$$

となる。

ここに、 $L_x L_y$: 薄膜上の照射面積、 n : 屈折率、 $T(\mathbf{k})$: フレネル透過係数、散乱因子 $S(\mathbf{q})$: 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 : 空気で 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。

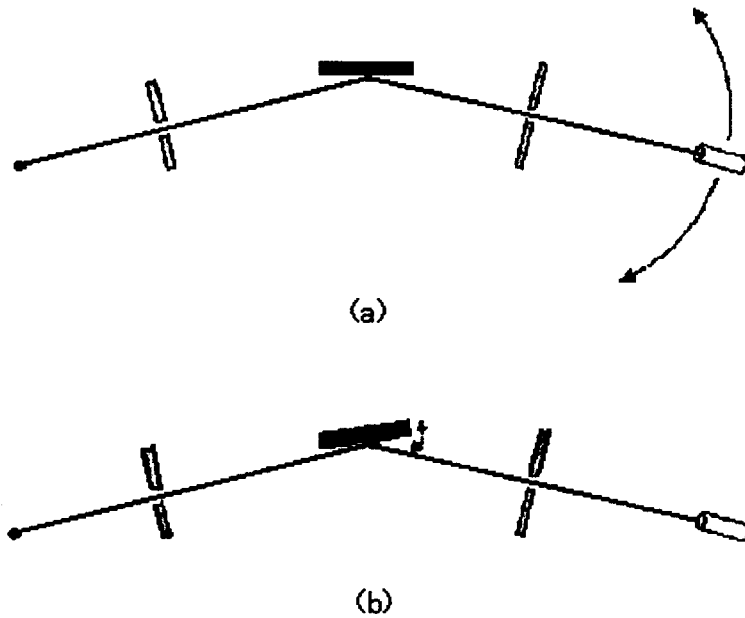


図6：測定モデル配置図 (a) 検出器スキャンのモデル(b) ロッキングスキャンのモデル

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⁶⁾

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

のように書き直される。ここに、散乱因子は

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

透過率 $t_r(k_1)$ は

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

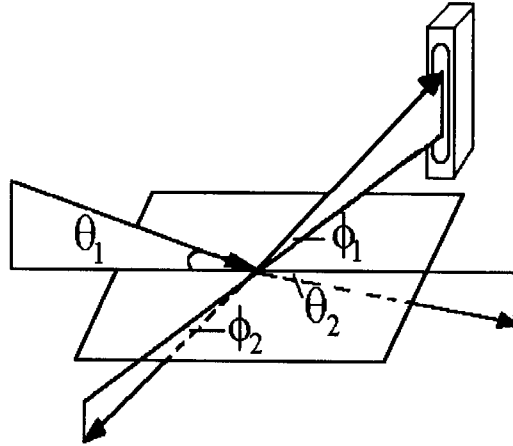


図7入力パラメーターの配置図

図7に示すように、 θ_1 は入射角度で、 ϕ_1 は散漫散乱の角度で、 θ_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 θ_c の時

snell 原理により、透過角度 θ_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 θ_c の時、透過角度 θ_t は

$$\theta_t = 0$$

となる。

III) 入射角度 $\theta_1 <$ 臨界角度 θ_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 θ_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 SDIFFF

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。

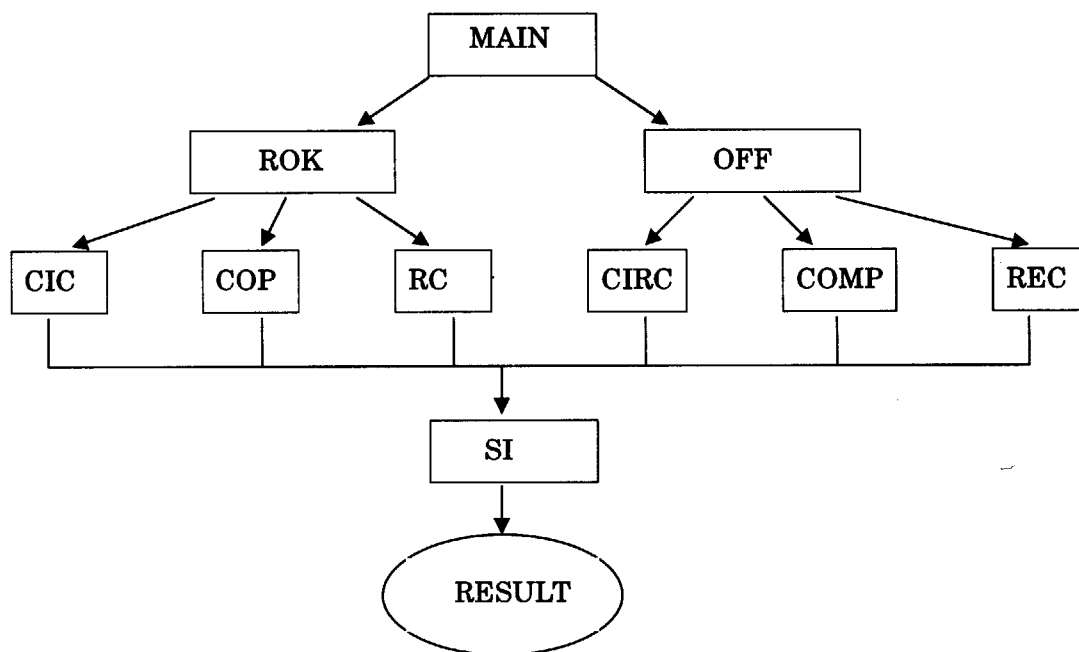


図8 プログラム SDFSN の構造図

MAIN：測定モデル(検出器スキャンとロックingsキャン)を選択する。

ROK：ロックings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。

A. 入力ファイル

プログラム **SDIFFF** 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)

B. キーボード操作

- 検出器スキャンを選択する場合、入力データを以下のように示す。

Incident angle : 入射ビームと薄膜表面の間の角度

中性子の波長によって、中性子における表面の最大臨界角度が与えられる。

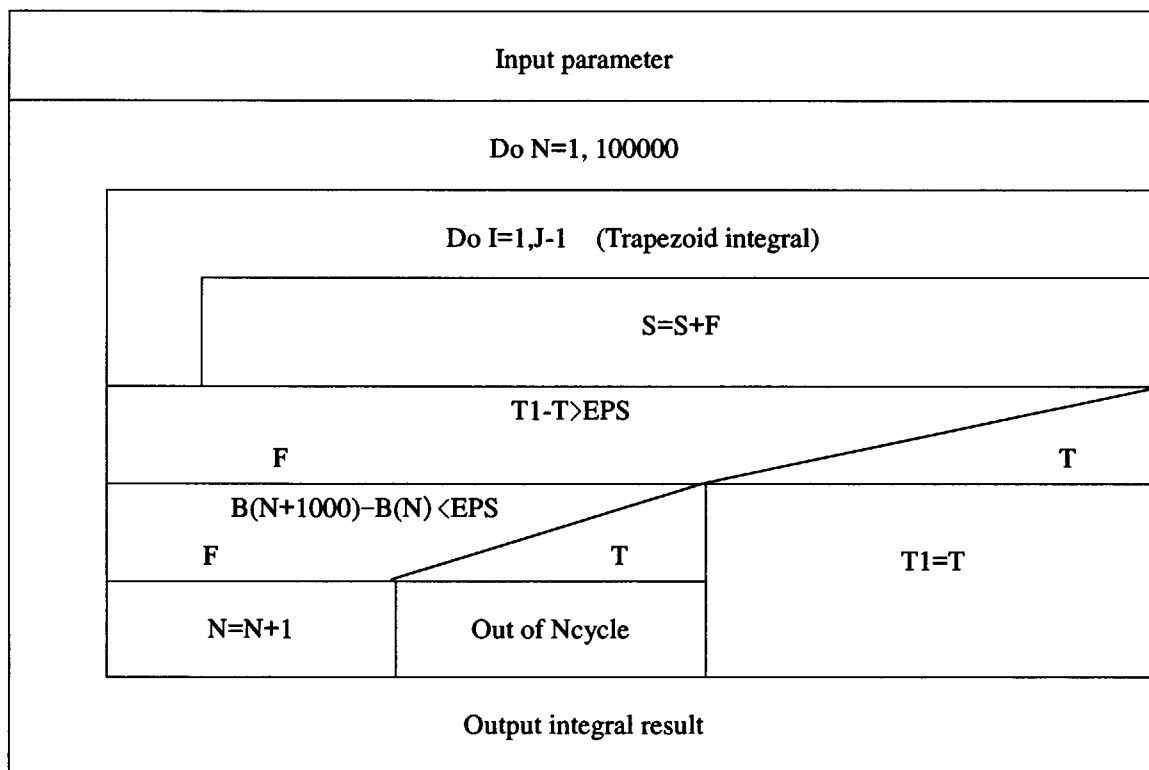
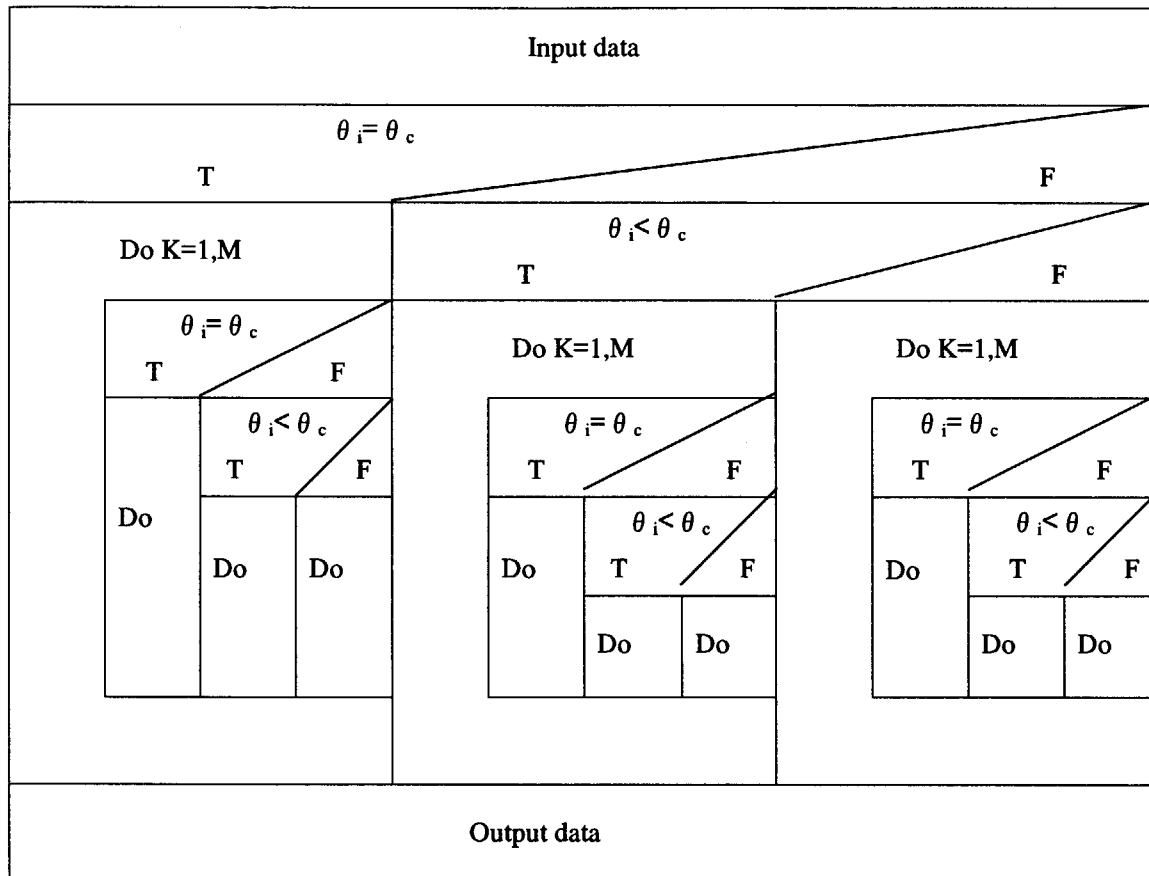
この臨界角度と **incident angle** と比べることにより、自動的にそれぞれのサブルーチン (**CIRC**, **COMP**, **REC**) の実行ができる。

Scanning angle : 検出器が最大の走査する角度

- ロッキングスキャンを選択する場合、入力データを以下のように示す。

Fixed angle : 薄膜が回転する角度

図9 プログラム SDIFF の流れ図



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

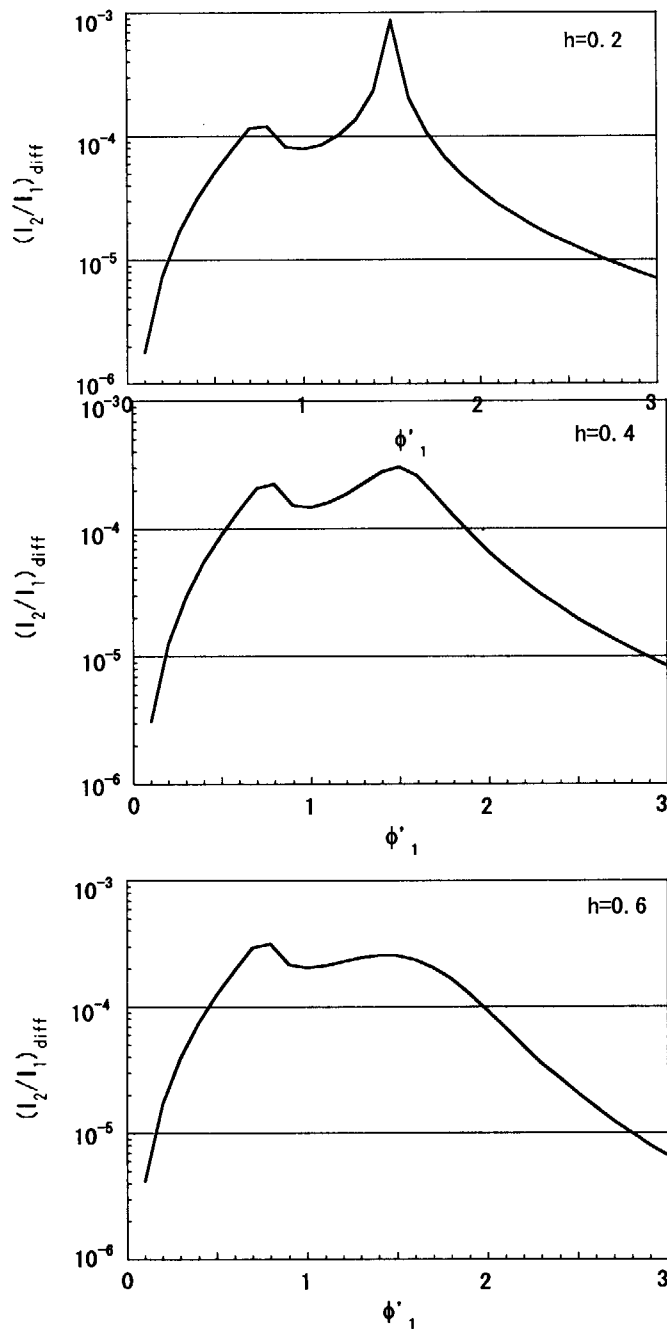


図 10 検出器スキャン測定における散漫散乱中性子の断面積と h の関係

図 10 に検出器スキャン測定による入射角度 1.5° 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、入射角度あるいは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⁷⁾。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。

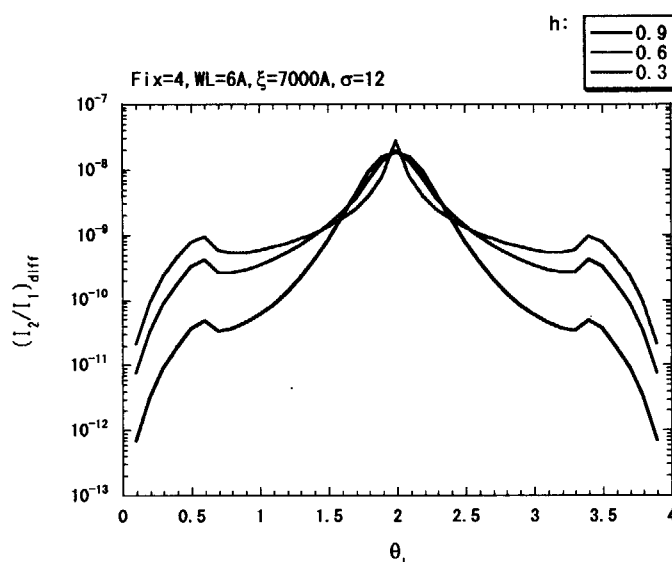


図 11 ロッキングスキャン測定による散漫散乱中性子の断面積と h の関係

ロッキングスキャン測定でロッキン角度 4° 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のように、鏡面反射の条件に関する最大のピークは相関距離 ξ の影響を受けられる。図 12 に大きい ξ 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 ξ の値は平坦な散漫散乱の分布に対応する。

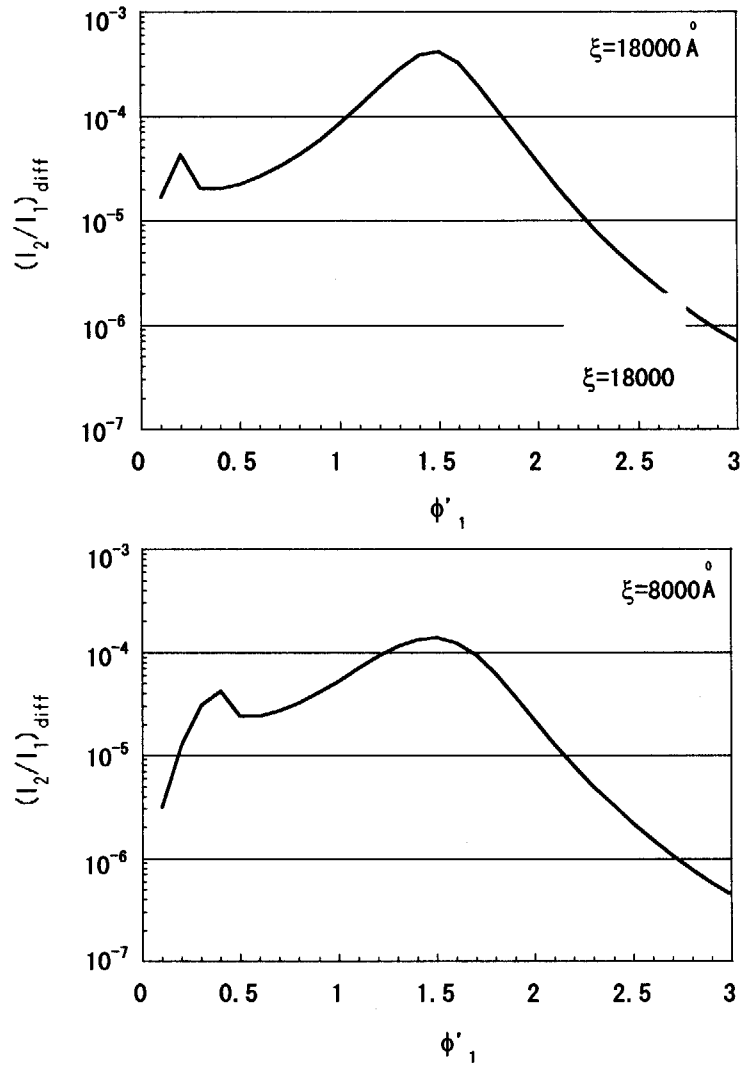


図 12 検出器スキャン測定における散漫散乱中性子の断面積と ξ の関係

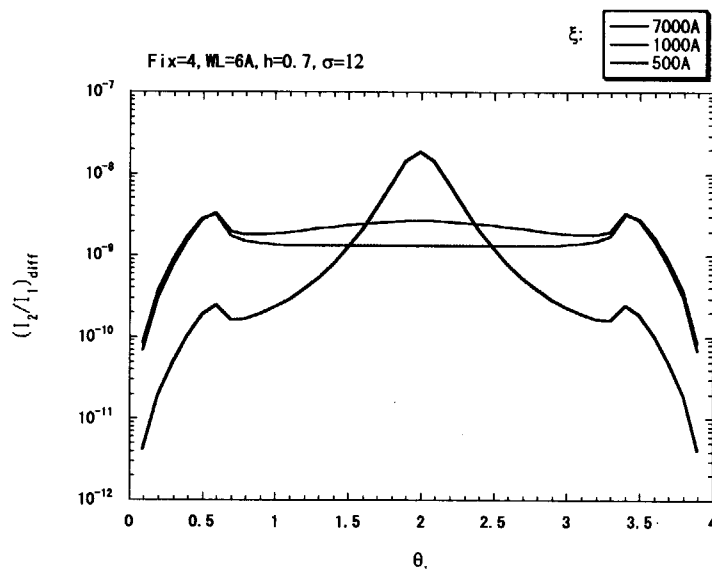


図 13 ロッキングスキャン測定による散漫散乱中性子の断面積と ξ の関係

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 σ である。図 1 4 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 1 4 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が分る。

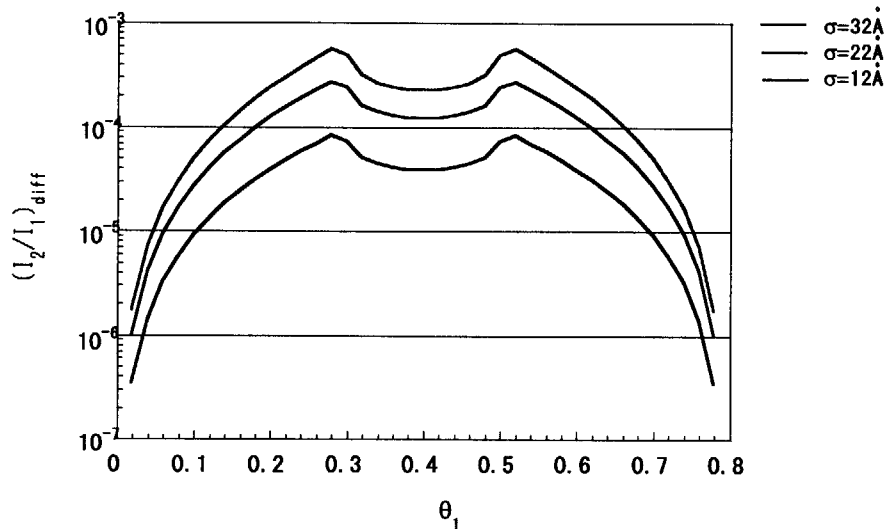


図 1 4 ロッキングスキャン測定による散漫散乱中性子の断面積と σ の関係

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 2\AA 、 8\AA の中性子の薄膜による散漫散乱を示す。波長 2\AA 、 8\AA 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。

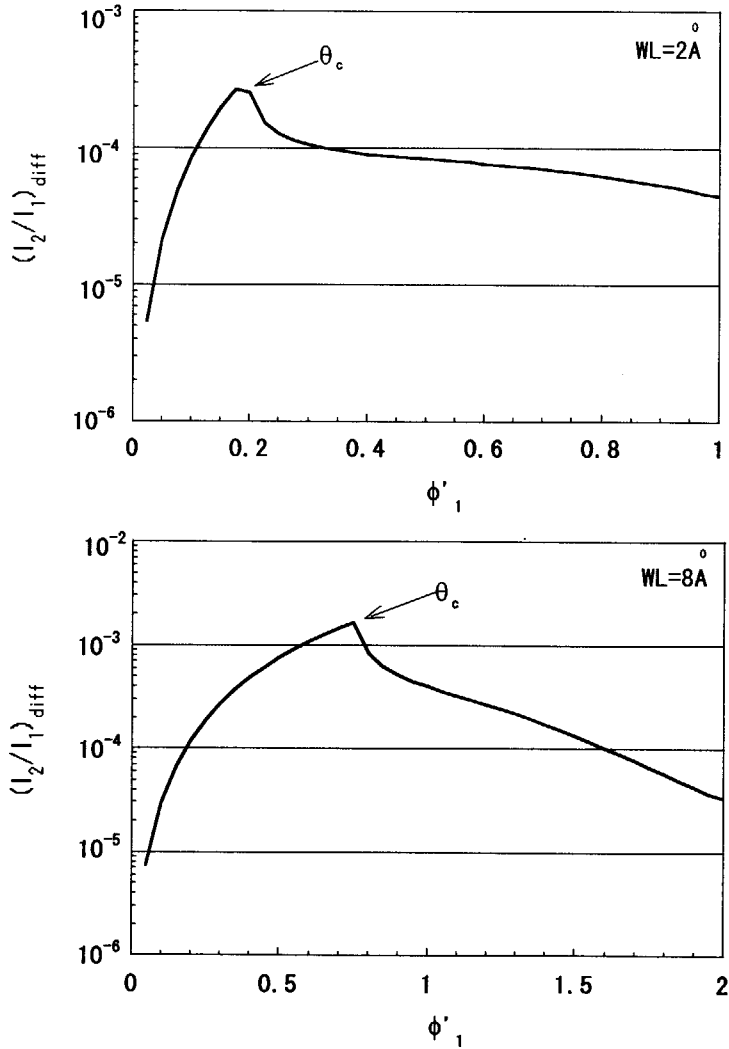


図15 中性子の波長と臨界角度の関係

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^{8,9,10}。

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。

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

ここで、 $\mathbf{R}=(x,y)r$, r は表面内のベクトルで、 $\langle \rangle_r$ 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。

$$C_{jj}(R)=\sigma_j^2 e^{-(R/\xi_j)^{2h_j}} \quad (3.1.2)$$

式中、 σ_j は j 層の rms 表面粗さ、 ξ_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、相関関数は下式のようになる。

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

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 σ_{jk} は j 層面と k 層面の表面粗さの平均値で表示される。

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

$$\xi_{jk} = \sqrt{\xi_j \xi_k} \tag{3.1.6}$$

ここで、 z_j は表面からj層面までの深さである。 ξ_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 ξ_z によって、垂直相関性は四つに分られている¹¹⁾。図16に多層膜の垂直相関性を示す。

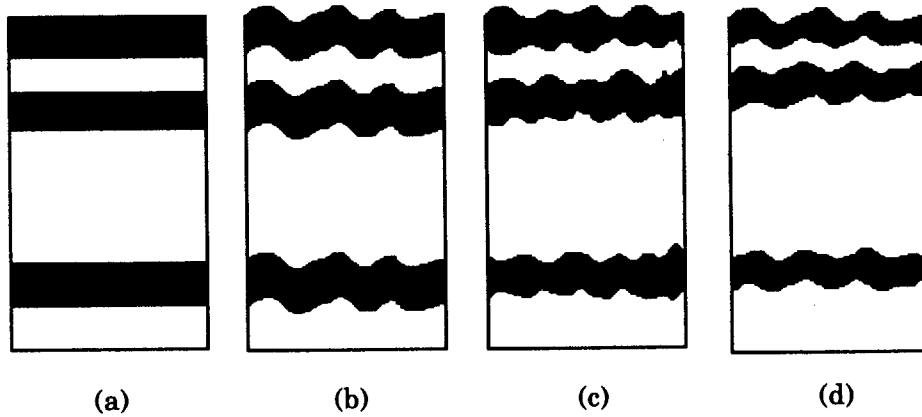


図16 多層膜のラフネスの相関性

- (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 ξ_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 ξ_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 ξ_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

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

となる。ここで、 λ は入射中性子の波長を、 $b_{j\text{coh}}$ は j 層面に関数 *rcoherent* 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¹²⁾

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

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

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、 α_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、波数は次の様に書ける。

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

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¹⁰⁾。

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

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

振幅比 X は¹⁵⁾

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

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。

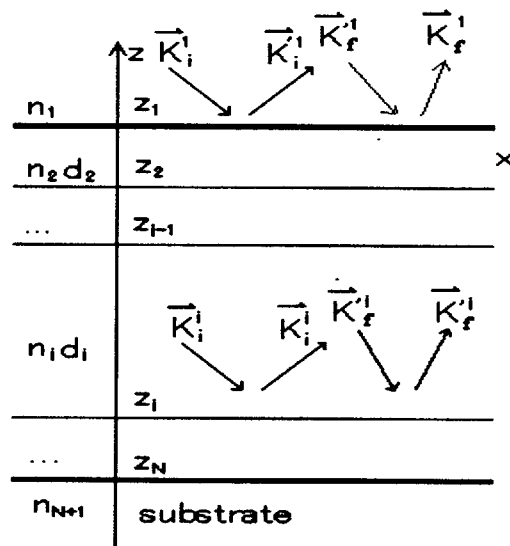
3.2.2 DWBA による散漫散乱

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年の間には、多層膜の取り扱いに関心が向けられ、Holyら、de Boerら^{13,14,15}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。

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

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



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、 $K = 2\pi/\lambda$ は真空中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

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

ここで、 ϕ_i は固有状態 Ψ_i に対する入射波である。

摂動系における波動場 $|\Psi\rangle$ 、 $|\tilde{\Psi}_f\rangle$ 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 $|\Psi\rangle$ 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。

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

$$\text{あるいは、} \quad G_j^0 = T_{i,j} T_{f,j}, \quad G_j^1 = T_{i,j} R_{f,j}, \quad G_j^2 = R_{i,j} T_{f,j}, \quad G_j^3 = R_{i,j} R_{f,j} \quad (3.2.16)$$

となる。そして、界面ラフネスに関する任意の行列 \hat{F}^j は以下のようになる。

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

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)から散漫散乱の断面積を下式のように書ける。

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma}{d\Omega} &= \text{Cov}(V_{if}^{(1)}, V_{if}^1) / 16\pi^2 \\ &= \sum_j^{N+1} \sum_k^{N+1} \text{Cov}(W_j, W_k) / 16\pi^2 \end{aligned} \quad (3.2.19)$$

ここで、 $\text{Cov}(a,b) = \langle ab^* \rangle - \langle a \rangle \langle b \rangle^*$ 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、

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

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 $q_x - q_y$ 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。

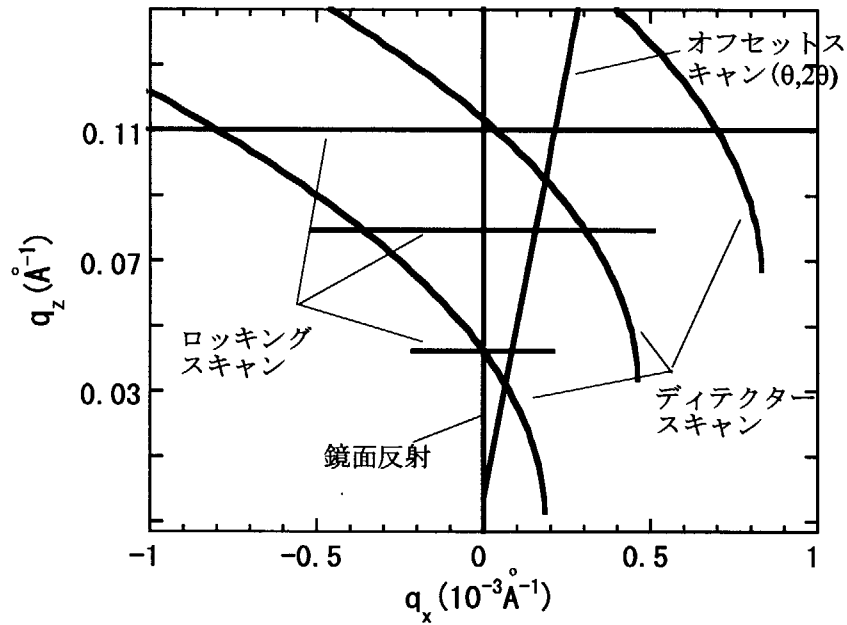


図 1 8 q_x - q_y の空間関係によるスキャン

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

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

ここで、 α_i は入射角度で、 α_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 1 9 に示す。

そして、図 1 8 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。

・ディテクタースキャン

ディテクタースキャンは、多層膜に対する入射角度 α_i を固定しておいて散乱角度 Φ 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 α_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。

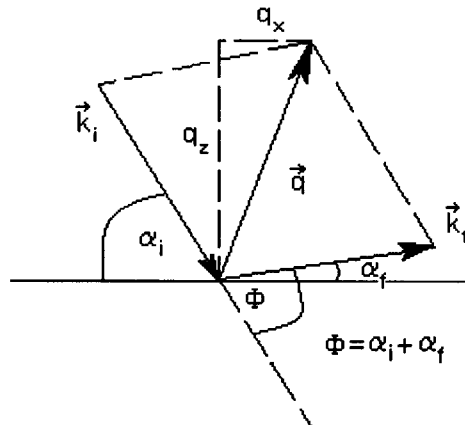


図19 散乱ベクトルの配列

3.4 多層膜による中性子の散漫散乱解析プログラム MDIFF

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、DWBA理論を利用したモデルを構築した。このモデルに基づいて、プログラム MDFSNS を作成した。

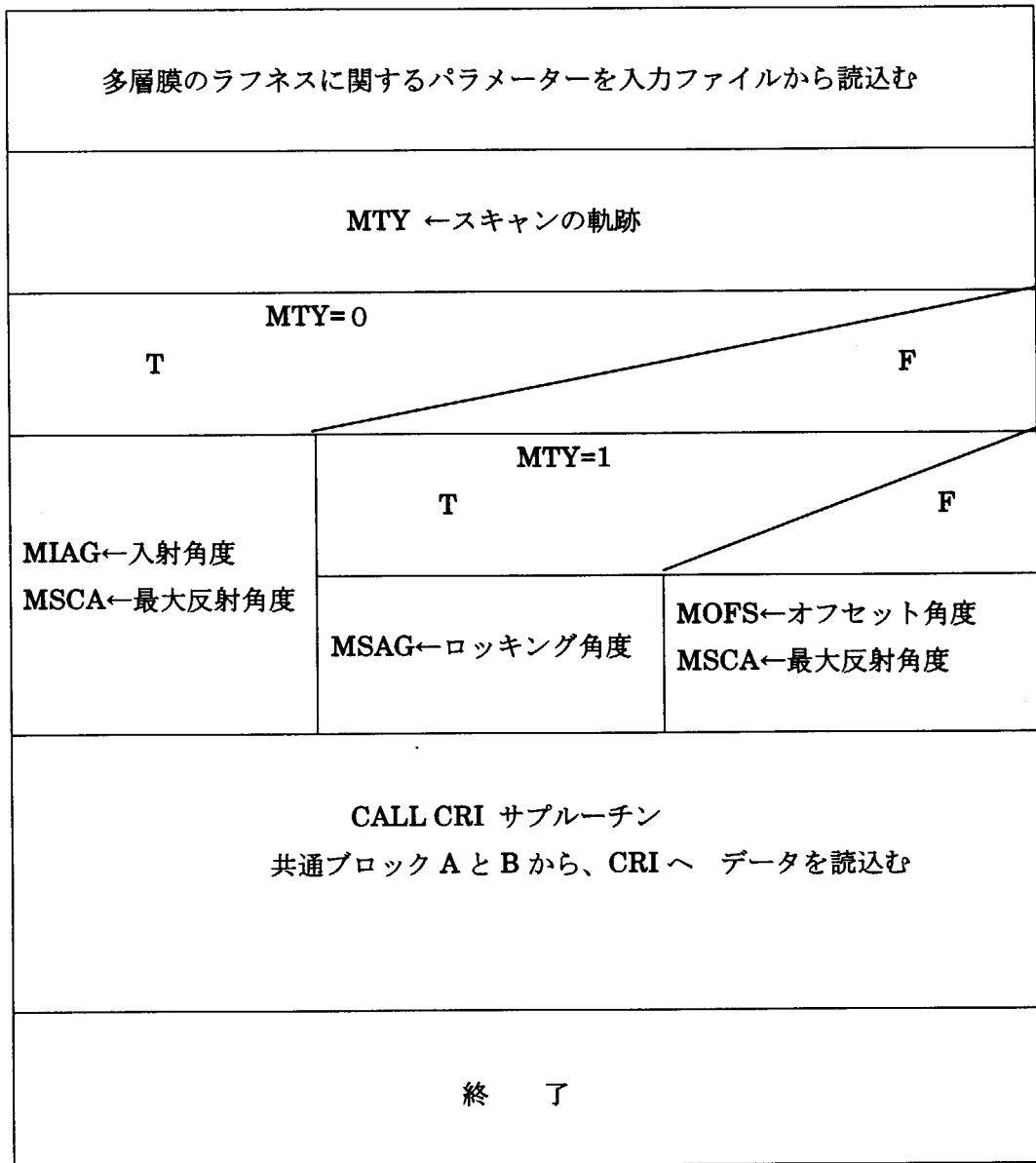
3.4.1 MDFSNS の構造と機能

プログラム MDFSNS は一つの主プログラムと一つのサブルーチンと二つの関数から構成される。

主プログラムの機能：

1. 多層膜のラフネスに関する全部のパラメーターを入力ファイルから読み込む。
2. スキャンの軌跡を選択する。(0:Detector scan 1:Rocking scan 2:Offset scan)
3. 2の選択によると、入射角度や最大反射角度やロッキング角度などを読み込む。
4. サブルーチン CRI を引用する。

主プログラム MDIFF の流れ図



サブルーチン CRI の機能：

1. 入射角度と反射角度を用いて、多層膜内の波数 $k_{i,f}$ を計算する。

$$\text{屈折率} n > \begin{cases} \cos(LAG) \\ \cos(FAG) \end{cases}, \quad k_{i,f} \text{ は実数になる。}$$

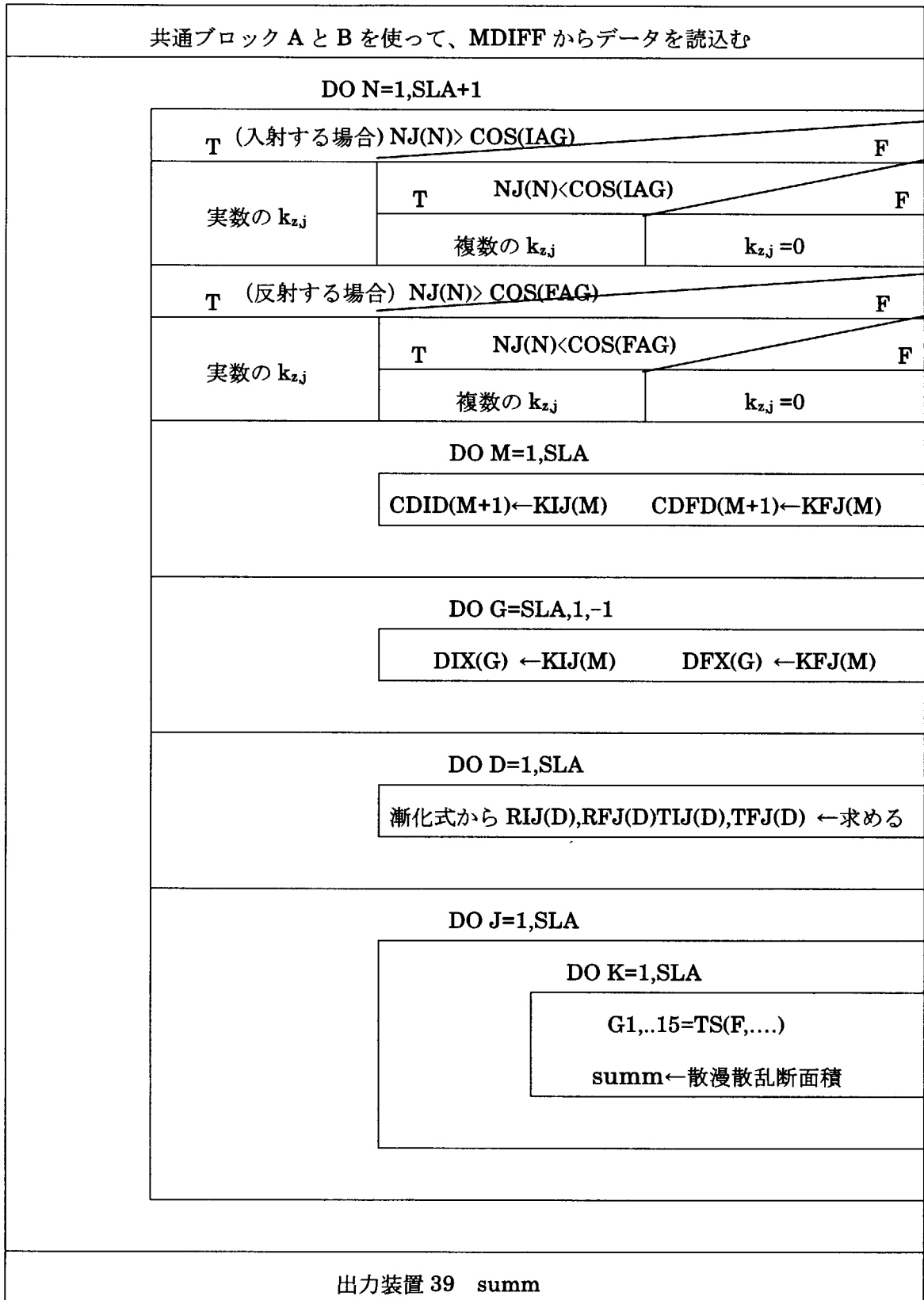
$$\text{屈折率} n < \begin{cases} \cos(LAG) \\ \cos(FAG) \end{cases}, \quad k_{i,f} \text{ は複数になる。}$$

$$\text{屈折率} n = \begin{cases} \cos(LAG) \\ \cos(FAG) \end{cases}, \quad k_{i,f} \text{ はゼロになる。}$$

2. 多層膜内の波数 $k_{i,f}$ を用いて、多層膜による透過係数 $t(j)$ と反射係数 $r(j)$ を計算する。
式(3.2.2)、(3.2.3)により、入射中性子と反射中性子の条件で計算は同時に実行する。
3. 多層膜による透過振幅 R と反射振幅 T を求める。
漸化式(3.2.5)、(3.2.6)により、境界条件 $R_{N+1}=0$ 、 $T_1=1$ で、透過振幅と反射振幅は配列 $TIT(M)$ 、 $TFT(M)$ 、 $RIR(M)$ 、 $RFR(M)$ に配置される。
4. 以上の計算をまとめて、波数 q_z と係数 G_j^m を得る。
5. 関数副プログラム F と TS を引用する。
関数副プログラム F は散乱因子を定義する。
関数副プログラム TS は F に対する Fourier 積分を行う。
6. 最後に DWBA 原理を利用し、散漫散乱断面積を求める。
求めたデータを装置 39 の出力ファイルに書き出す

サブルーチン CRI の流れ図を以下に示す。

サブルーチン CRI の流れ図



サブルーチン CRI の中に 2 つの関数を引用する。一つは散乱因子 S を定義する関数副プログラム F で、もう一つは Fourier 積分を計算する関数副プログラム TS である。

I. 関数副プログラム F

関数副プログラム F (XX, CC, E, SGM, GZ, PH) は下式の散乱因子を定義する。

$$F = \{ \exp[q_{z,j}^m q_{z,k}^{n*} \sigma_{jk}^2 e^{-(R/\xi_{jk})^{2h}}] - 1 \} \times \cos(q_x X).$$

ここで、F は五つの変数がある。変数と実引数の対応関係は以下の通りに示す。

XX = 表面距離 X

CC = q_x (散乱ベクトルの表面に水平な成分)

E = $q_{z,j} q_{z,k}$ (j 層面と k 層面における散乱ベクトル q_z の組合せ)

SGM = $\sigma_j \sigma_k$ (j = k の場合) 或いは、

$$SGM = \sigma_j \sigma_k e^{-|z_j - z_k| \xi_z} \quad (j \neq k \text{ の場合})$$

$$GZ = \sqrt{\xi_j \xi_k} \quad (j \text{ 層面と } k \text{ 層面の相関距離})$$

PH = h (Hurst パラメーター)

II. 関数副プログラム TS

・目的

1 次元有限区間の積分値 $\int_C^D f(x) dx$ を Gauss の公式により求める。

・リンクの方法

G = TS(F, C, D, N, CC, E, SGM, GZ, PH) のように任意の数式中で関数のように用いる。

F: 被積分関数の値を与える関数関数副プログラム名つまり散乱因子を定義される関数副プログラム F

C: 積分の下限

D: 積分の上限

N: 分点の数 2N で与えられる。

CC, E, SGM, GZ, PH は関数副プログラム F の変数と同じ意味である。

・入出力データの範囲, 形式

N は整数形 1 語長 (I) その他は実数形 1 倍長表示 (R), かつ $1 \leq N \leq 8$

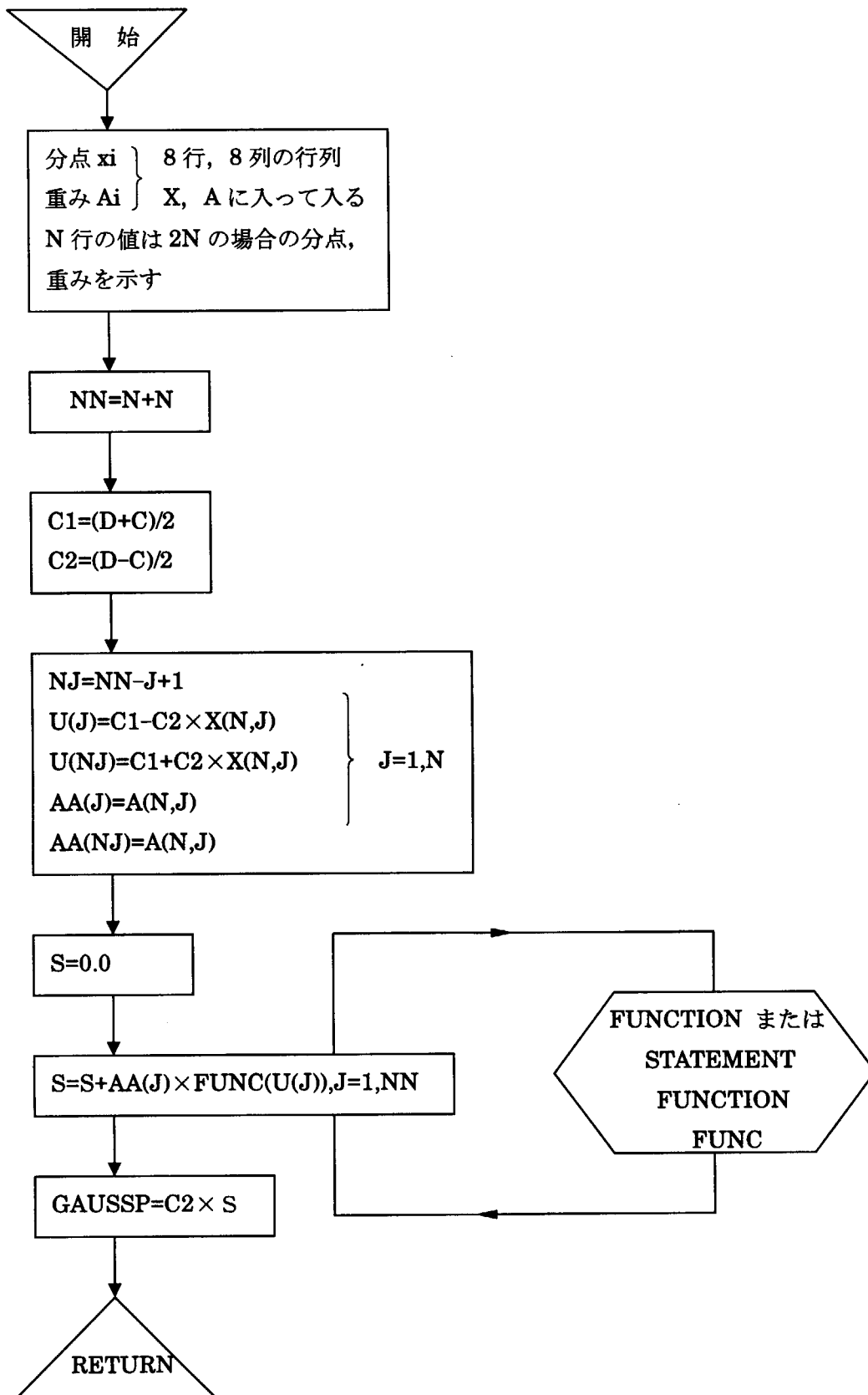
・エラーメッセージ

N が $N \leq 0$, $N \geq 9$ の時は [N = INPUT の値/N MUST BE LARGER THAN 0 AND SMALLER THAN 9] と印字。N = 8 とおいて計算は実行する。

・F を関数副プログラムとして使う時宣言 EXTERNAL の中になければならない。

関数副プログラム TS の流れ図を下図に示す。

関数副プログラム TS の流れ図



3.4.2 MDIFF の入出力管理

MDIFF 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。

A. 入力ファイル

多層膜のラフネスに関するパラメーターをすべて入力ファイルから計算される配列に読み込む。その配置関係を以下の表に説明する。

パラメーター	装置	入力ファイル	配列
層面の深さ	11	SDSD.DAT	MSDS(J)
Coherent な散乱半径	21	SBND.DAT	MSBN(J)
rms 表面粗さ σ	31	SSGD.DAT	MSSG(J)
相関距離 ξ	41	SGZD.DAT	MSGZ(J)
Hurst パラメーター h	51	SHD.DAT	MSH(J)

B. キーボードから

全ての角度の設置をキーボードから与えるにはつぎのような形式で入力する。

第1歩：多層膜の層数を入力する。

第2歩：入射中性子の波長を入力する。

第3歩：測定モデルを選ぶ

1を選ぶ場合、入射角度を入力する (*)

最大走査角度を入力する

反射角度：0～最大走査角度 (*)

2を選ぶ場合、ロッキング角度を入力する。

入射角度：0～ロッキング角度 (*)

反射角度＝ロッキング角度-入射角度 (*)

3を選ぶ場合、オフセット角度を入力する。

最大走査角度を入力する

入射角度：0～オフセット角度 (*)

反射角度＝入射角度+オフセット角度 (*)

C. 出力ファイル

計算した結果を装置 39 での出力ファイル RES.DAT を書き出す。

3.5 計算結果

今回、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。

3.5.1 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 にディテクタース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 20 \AA 、 100 \AA 、 200 \AA 。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。

$$\begin{aligned} q_z &= n2\pi/D = k_1(\sin a_f + \sin a_i), \\ q_x &= k_1(\cos a_f - \cos a_i) \end{aligned} \quad (3.5.1)$$

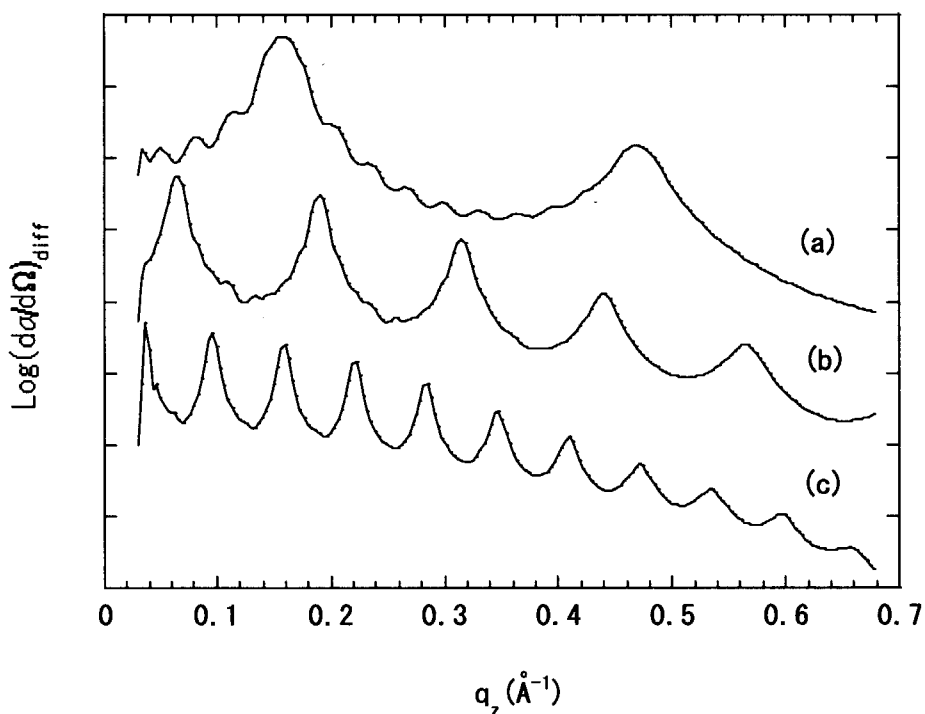


図 20 多層膜の周期 D に対する共鳴散乱ピーク (a) $N=20$, $D=40 \text{ \AA}$ (b) $N=20$, $D=100 \text{ \AA}$ (c) $N=20$, $D=200 \text{ \AA}$

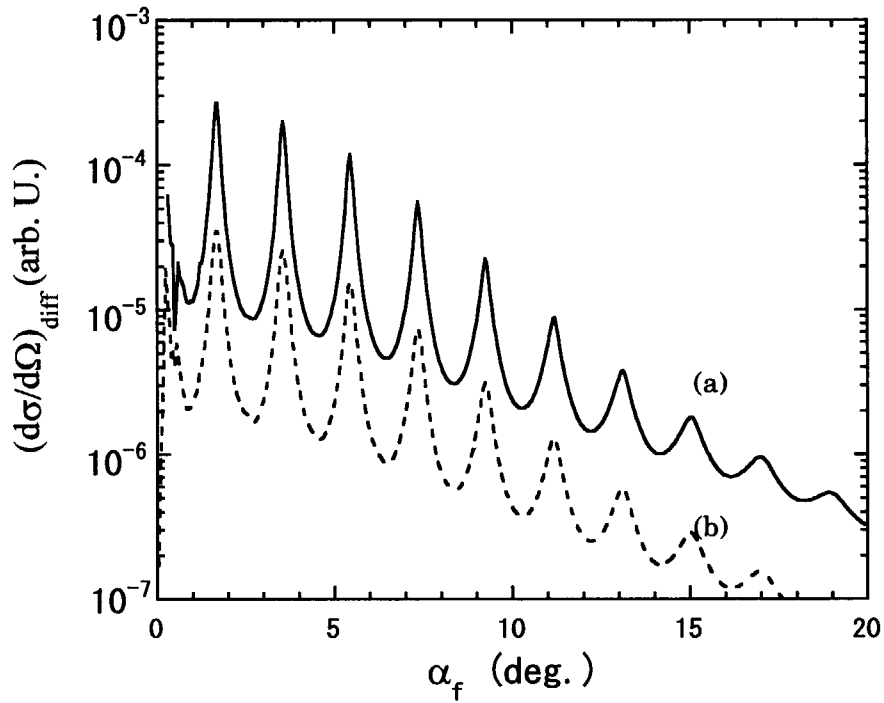


図 2.1 多層膜による共鳴散乱の分布。多層膜の周期は 100\AA である。 $h_j=0.5$, $\sigma_j=12\text{\AA}$, $\xi_j=12\text{\AA}$ (a) 層数 $N=40$, (b) 層数 $N=20$

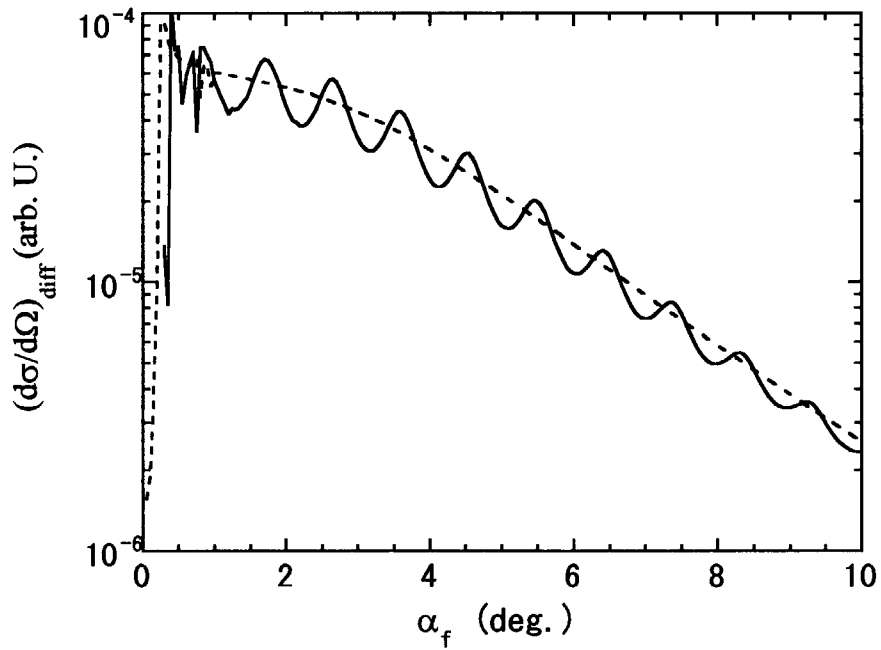


図 2.2 多層膜の界面における部分な相関性と非相関性による散乱散漫分布

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_x 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 2 1 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 2 1 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¹⁶⁾。

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 2 2 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 2 1 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 2 2 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、散漫散乱の断面積は平坦なかつ無特徴の傾向となる¹⁷⁾。

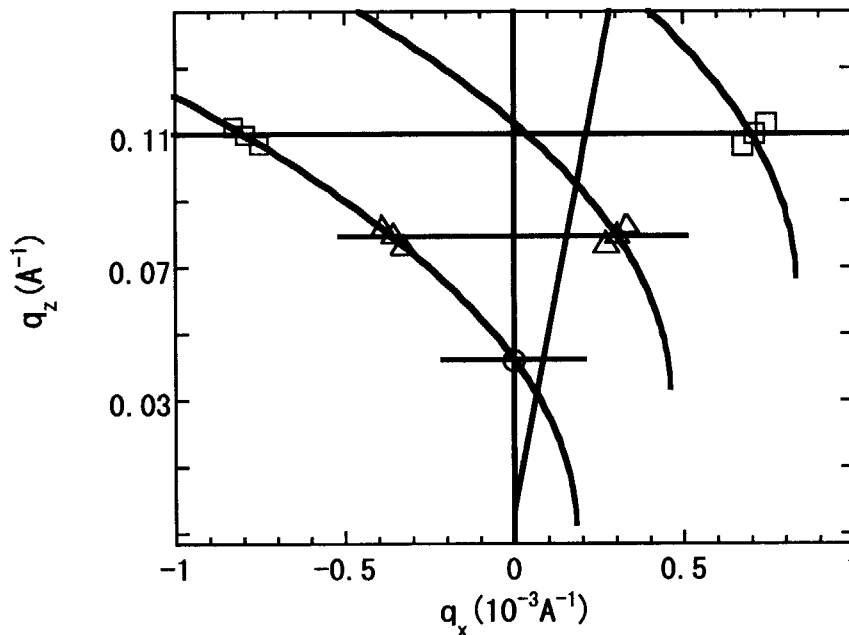


図 2 3 多層膜の相互格子空間において散漫散乱の特徴的位置。ロッキングスキャンに観測されるピークは△と□に現れる。

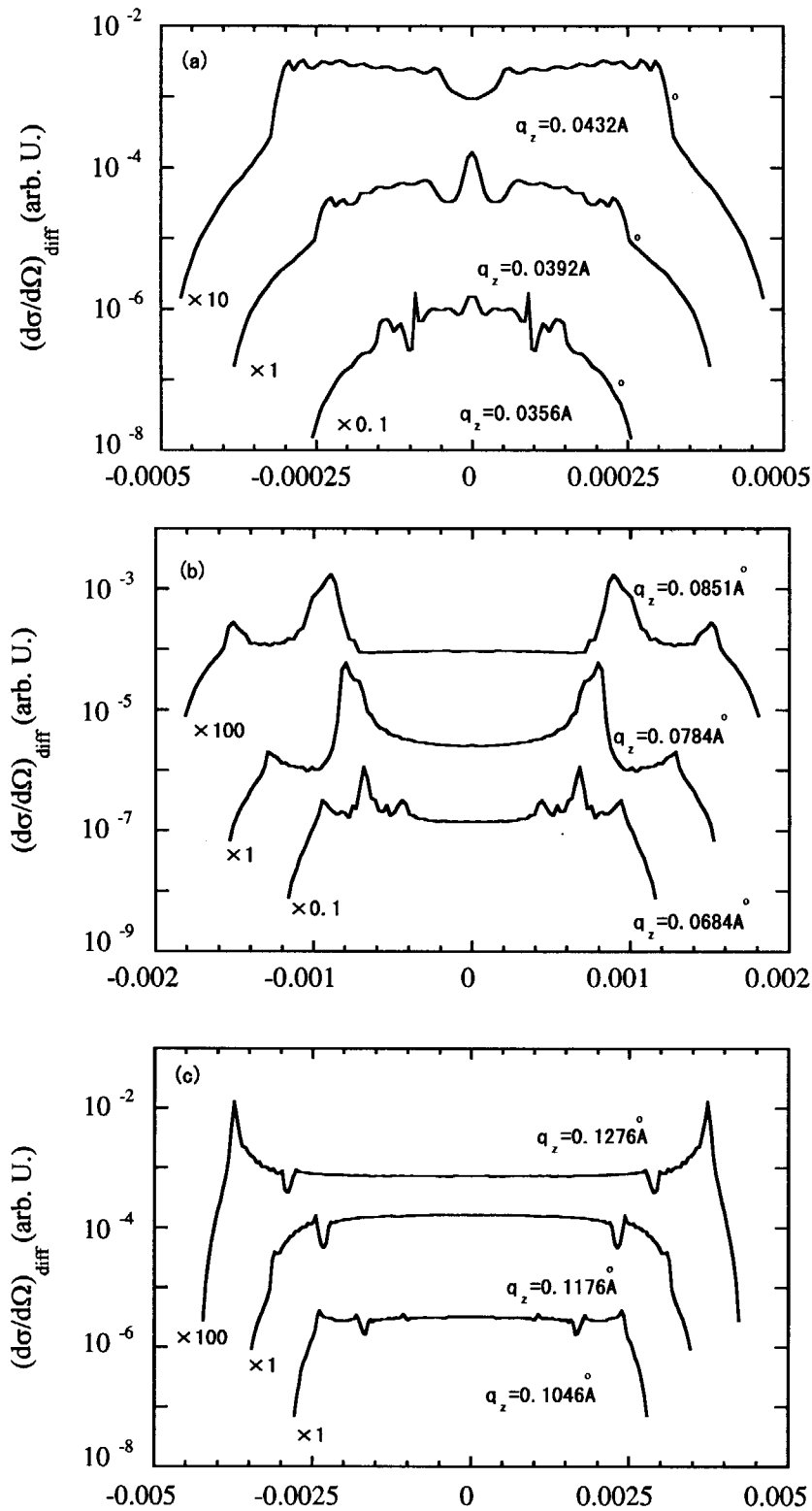


図24 DWBA 原理によるロッキングスキャンの散漫散乱の分布 (a)第一 Bragg ピーク $q_x = 0.0392 \text{ \AA}$ (b)第二 Bragg ピーク $q_x = 0.0784 \text{ \AA}$ (c)第三 Bragg ピーク $q_x = 0.1176 \text{ \AA}$

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 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 2 3 に第一の ($q_x=0.0392\text{\AA}^{-1}$)、第二の ($q_x=0.0784\text{\AA}^{-1}$) 及び第三のピーク ($q_x=0.1176\text{\AA}^{-1}$) 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 2 4 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 1 8 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 2 4 (a) の第一 Bragg ピーク ($q_x=0.0392\text{\AA}^{-1}$) 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 2 4 (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_z 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ので、中心のピークが現れている。一方、 q_z 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_z 値の場合、鏡面反射よりも散漫散乱が強いので、中心のピークは現れていない⁹⁾。

図 2 4 (b) では第二 Bragg ピーク ($q_x=0.0784\text{\AA}^{-1}$) 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まる。これは Yoneda ピークである。入射角度 a_1 また反射角度 a_2 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_z 値が第二、第三 Bragg ピークに近づくと、入射角度 a_1 また反射角度 a_2 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²¹⁾。この対称性は図 2 4 (b) での二つの尖鋭なピークに（図 2 3 に Δ が表示される所）、図 2 4 (c) での二つの谷（図 2 3 に \square 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 $a_2=2a_1$ かつ a_1 に沿って現れる。また、図 2 4 (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\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\AA である。図 25 に DWBA による計算値と実験値を示す。図 2 5 (a)、(b)、(c) はそれぞれの第一 Bragg ピーク ($q_z=0.03030\text{\AA}^{-1}$) と第二 Bragg ピーク ($q_z=0.032032\text{\AA}^{-1}$) と第三 Bragg ピーク ($q_z=0.064062\text{\AA}^{-1}$) による散漫散乱分布である。図 2 5 (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。

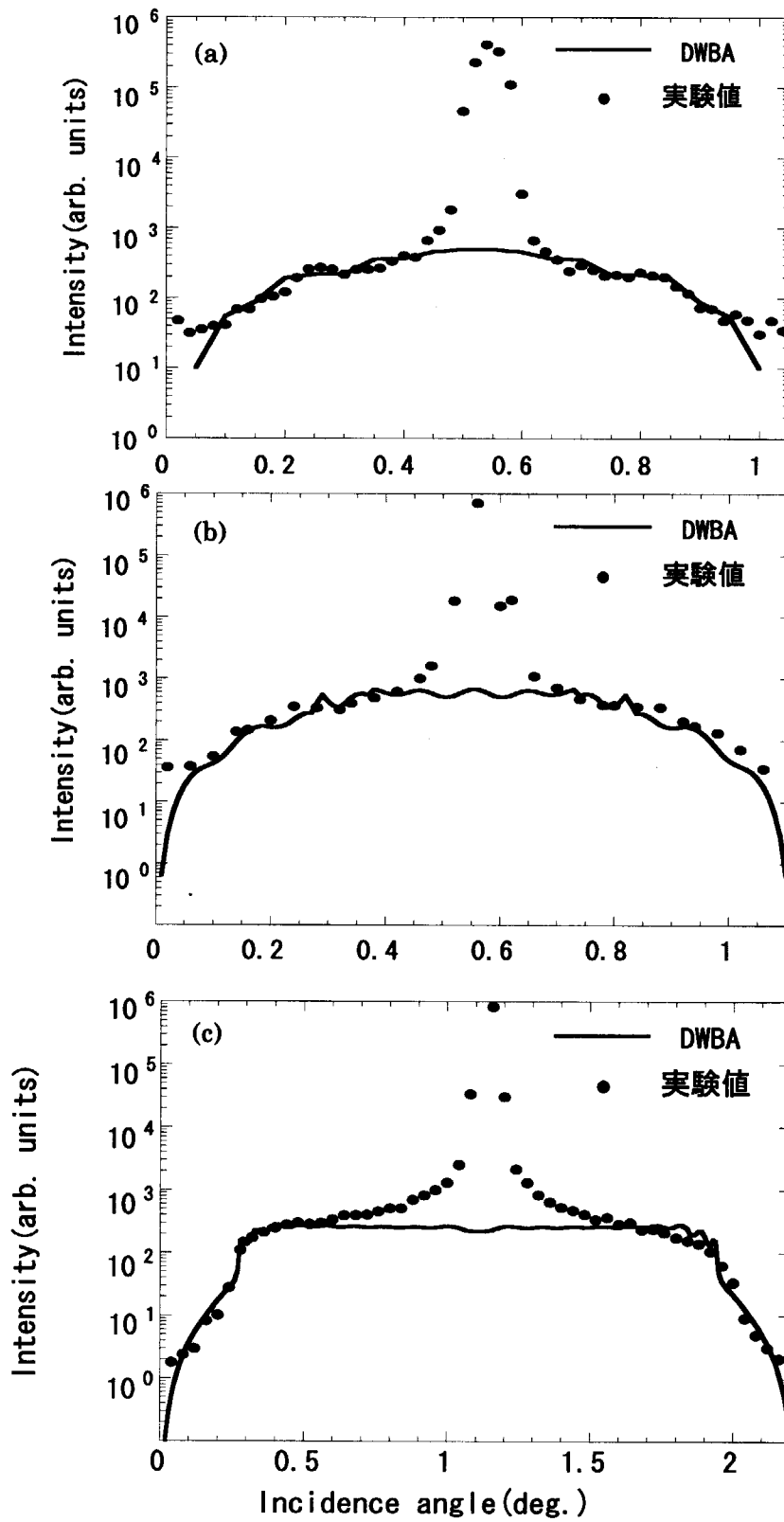


図 25 実験値と理論値に散漫散乱の強度 (a) 第一 Bragg ピーク $q_z=0.03030 \text{ \AA}^{-1}$,
 (b) 第二 Bragg ピーク $q_z=0.032032 \text{ \AA}^{-1}$, (c) 第三 Bragg ピーク $q_z=0.064062 \text{ \AA}^{-1}$

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った。一方、図 2 5 (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。

3.5.3 オフセットスキャンによる散漫散乱

オフセットスキャンは界面の垂直相関性を判断する有効な方法とされている²²⁻²⁵⁾。図 2 6 に界面の相関性に関して、四つの多層膜での散漫散乱の断面積を示す。多層膜の層数は全て 20 層である。オフセット角度は 0.05° を設置した。垂直な相関長さ $\xi_z = 0.0\text{\AA}$ の時、多層膜の界面は完全に非相関になり、散漫散乱は無特徴かつ平坦的な傾向になる。垂直な相関長さ ξ_z が大きくなるにつれて、周期的なピークがだんだん現れている。特に、 $\xi_z = 1000\text{\AA}$ (図 2 6 (c)) から、隣接する界面の相関性が高くなるのみならず、表面と基板のラフネスも相関性が高まる。これらのピークを現れるのは鏡面反射による Bragg ピークとほぼ同じ所に対応する ($q_z = n2\pi/D$)。さらに、 $\xi_z > 20000\text{\AA}$ の時、多層膜の界面は完全に相関性をもつ。

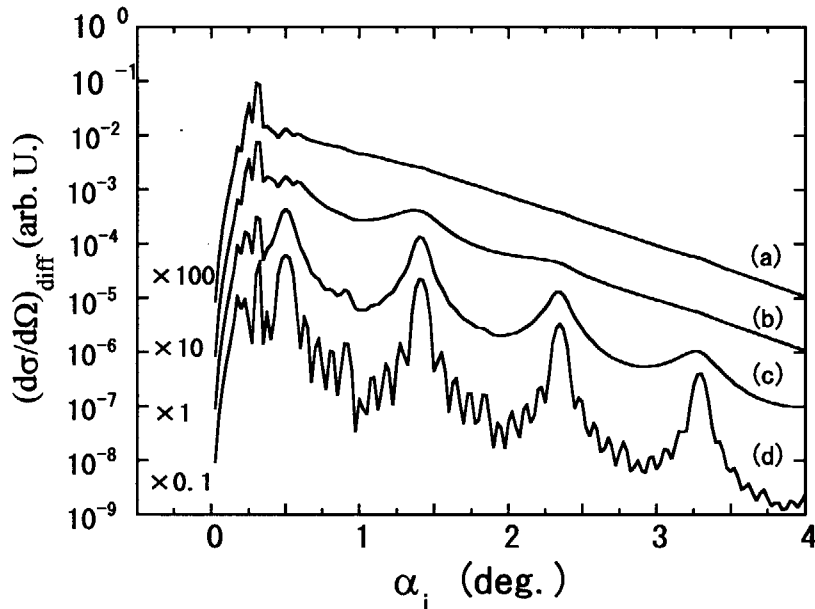


図 2 6 オフセットスキャンによる界面の垂直相関性。

(a) $\xi_z = 0\text{\AA}$, (b) $\xi_z = 100\text{\AA}$, (c) $\xi_z = 1000\text{\AA}$, (d) $\xi_z > 2000\text{\AA}$.

4. 結 言

本研究では、DWBA 原理を用いて薄膜および多層膜による中性子の散漫散乱の解析コードの開発を行った。また、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するとともに、本解析コードをもとに、今後成膜する高性能多層膜ミラーの面内及び面間の界面粗さの相関の評価を行うこととしている。さらに、これらの多層膜ミラーを用いた中性子ビーム収束光学系の収差等に関する評価解析を行い、当該光学系の構築のための設計に資することとしている。

謝 辞

九州大学大学院工学研究院的場優教授、魚住佑介助教授には、本研究の推進にあたりご指導ご鞭撻を賜りました。大強度陽子加速器施設開発センター中性子施設開発グループリーダー池田裕二郎博士には、本研究全般について有意義なコメントを頂きました。

参 考 文 献

- 1) K. Sinha, E. B. Sirota, S. Garoff, and H. B. Stanelly, 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. Kuběna, I. Ohlídal, K. Iischka, 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. Barabási, 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).

国際単位系 (SI) と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質の量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつ SI 組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s ⁻¹
力	ニュートン	N	m·kg/s ²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N·m
工率, 放射束	ワット	W	J/s
電気量, 電荷	クーロン	C	A·s
電位, 電圧, 起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメン	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光度	ルーメン	lm	cd·sr
照度	ルクス	lx	lm/m ²
放射能	ベクレル	Bq	s ⁻¹
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量当量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分, 時, 日	min, h, d
度, 分, 秒	°, ', "
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

1 eV = 1.60218 × 10⁻¹⁹ J
 1 u = 1.66054 × 10⁻²⁷ kg

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オングストローム	Å
バ	b
バール	bar
ガリ	Gal
キュリー	Ci
レントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

1 Å = 0.1 nm = 10⁻¹⁰ m
 1 b = 100 fm = 10⁻²⁸ m²
 1 bar = 0.1 MPa = 10⁵ Pa
 1 Gal = 1 cm/s² = 10⁻² m/s²
 1 Ci = 3.7 × 10¹⁰ Bq
 1 R = 2.58 × 10⁻⁴ C/kg
 1 rad = 1 cGy = 10⁻² Gy
 1 rem = 1 cSv = 10⁻² Sv

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 ¹⁸	エクサ	E
10 ¹⁵	ペタ	P
10 ¹²	テラ	T
10 ⁹	ギガ	G
10 ⁶	メガ	M
10 ³	キロ	k
10 ²	ヘクト	h
10 ¹	デカ	da
10 ⁻¹	デシ	d
10 ⁻²	センチ	c
10 ⁻³	ミリ	m
10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ⁻¹⁸	アト	a

(注)

- 表1-5は「国際単位系」第5版, 国際度量衡局 1985年刊行による。ただし, 1 eV および 1 uの値は CODATA の1986年推奨値によった。
- 表4には海里, ノット, アール, ヘクトールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは, JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC閣僚理事会指令では bar, barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

換算表

力	N (=10 ⁵ dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

粘度 1 Pa·s (= N·s/m²) = 10 P (ポアズ) (g/(cm·s))

動粘度 1 m²/s = 10⁶ St (ストークス) (cm²/s)

圧	MPa (=10 bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg (Torr)	lbf/in ² (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062 × 10 ³	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322 × 10 ⁻⁴	1.35951 × 10 ⁻³	1.31579 × 10 ⁻³	1	1.93368 × 10 ⁻²
	6.89476 × 10 ⁻³	7.03070 × 10 ⁻²	6.80460 × 10 ⁻²	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J (=10 ⁷ erg)	kgf·m	kW·h	cal (計量法)	Btu	ft·lbf	eV	1 cal = 4.18605 J (計量法)
	1	0.101972	2.77778 × 10 ⁻⁷	0.238889	9.47813 × 10 ⁻⁴	0.737562	6.24150 × 10 ¹⁸	= 4.184 J (熱化学)
	9.80665	1	2.72407 × 10 ⁻⁶	2.34270	9.29487 × 10 ⁻³	7.23301	6.12082 × 10 ¹⁹	= 4.1855 J (15 °C)
	3.6 × 10 ⁶	3.67098 × 10 ⁵	1	8.59999 × 10 ⁵	3412.13	2.65522 × 10 ⁶	2.24694 × 10 ²⁵	= 4.1868 J (国際蒸気表)
	4.18605	0.426858	1.16279 × 10 ⁻⁶	1	3.96759 × 10 ⁻³	3.08747	2.61272 × 10 ¹⁹	仕事率 1 PS (仏馬力)
	1055.06	107.586	2.93072 × 10 ⁻⁴	252.042	1	778.172	6.58515 × 10 ²¹	= 75 kgf·m/s
	1.35582	0.138255	3.76616 × 10 ⁻⁷	0.323890	1.28506 × 10 ⁻³	1	8.46233 × 10 ¹⁸	= 735.499 W
	1.60218 × 10 ⁻¹⁹	1.63377 × 10 ⁻²⁰	4.45050 × 10 ⁻²⁶	3.82743 × 10 ⁻²⁰	1.51857 × 10 ⁻²²	1.18171 × 10 ⁻¹⁹	1	

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270 × 10 ⁻¹¹
	3.7 × 10 ¹⁰	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58 × 10 ⁻⁴	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

多層膜による中性子散漫散乱解析コードの開発

R100

古紙配合率100%
白化度70%再生紙を使用しています