東京大学
THE UNIVERSITY OF TOKYO

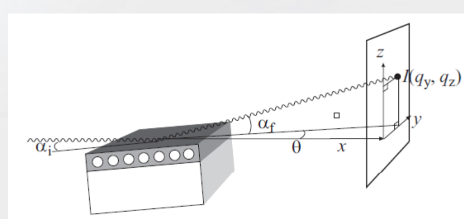
X線（中性子線）を用いた 高分子薄膜・表面・界面の構造解析（反射と散乱）

横山英明
東京大学 大学院新領域創成科学研究科
物質系専攻
yokoyama@molle.k.u-tokyo.ac.jp
http://www.molle.k.u-tokyo.ac.jp

東京大学
THE UNIVERSITY OF TOKYO

なぜ薄膜・界面の構造解析が必要か？

- デバイスの薄膜化に伴い、薄膜中での構造解析の必要性
- 電子顕微鏡
  - ごく一部の情報
  - 統計量が得られない
- 表面解析手法
  - XPS
  - SIMS
  - AFM
  - 薄膜内の埋もれた構造が見えない
- 透過散乱実験
  - 散乱体積が小さすぎて検出できない
  - 基板があると使えない
- 基板上の薄膜中の埋もれた構造の検出

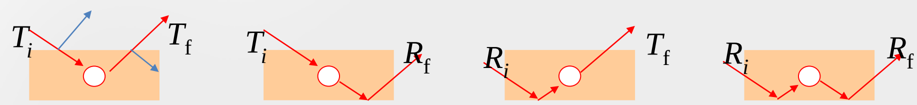


今日の講義の目的地

- 反射と散乱が同時に起こる斜入射小角散乱(GISAS)とは何か理解すること

$$I(q_y,q_z)=\frac{1-e^{-2\mathrm{Im}(q_z)}}{32\pi^2\,\mathrm{Im}(q_z)}\Big|T_iT_fF(q_y,\mathrm{Re}(q_{a,z}))+T_iR_fF(q_y,\mathrm{Re}(q_{b,z}))$$

$$+R_iT_fF(q_y,\mathrm{Re}(q_{c,z}))+R_iR_fF(q_y,\mathrm{Re}(q_{d,z}))\Big|^2$$



$q_{a,z}=k_{z,f}-k_{z,i}$ $q_{b,z}=-k_{z,f}-k_{z,i}$ $q_{c,z}=k_{z,f}+k_{z,i}$ $q_{d,z}=-k_{z,f}+k_{z,i}$

- 小角散乱の原理
- 反射率の原理
- プローブ:X線　中性子

X線

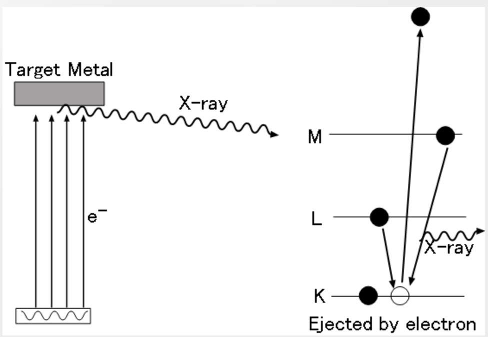
- X線　電磁波
  - 光速c、周波数ν、波長λ、プランク定数h、エネルギーE

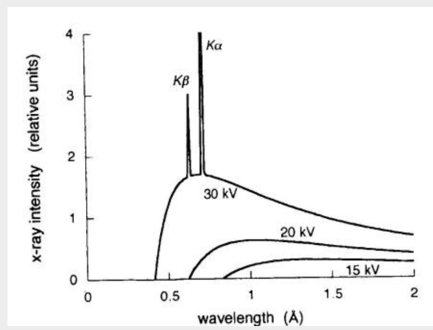
$$E=h\nu=\frac{hc}{\lambda}\qquad\lambda=\frac{c}{\nu}$$

  - 紫外線3eV(380 nm)~6eV(200nm)
  - 遠紫外線3eV(380 nm)~6eV(200nm)
  - 超軟X線 (Ultrasoft X-ray) ～10eV　紫外線に近いX線
  - 軟X線 (Soft X-ray) ～0.1 - 2keV　透過性の弱いX線
  - X線 (X-ray) ～2 - 20keV(硬X線にも分類される>5keV)
  - 硬X線 (Hard X-ray) 約20 - 100keV　透過性の強いX線
  - *E* (KeV) = 12.40 / λ (Å)
  - 高分子の小角散乱実験: 8keV前後の(硬)X線

X線源

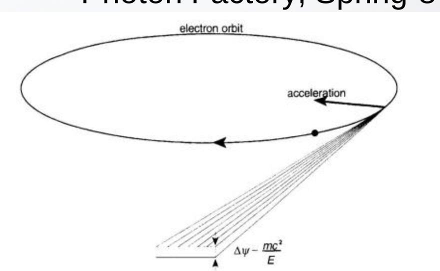
- 特性X線
  - Targetの選択で特定波長のX線が得られる。
  - i.e.　CuKα

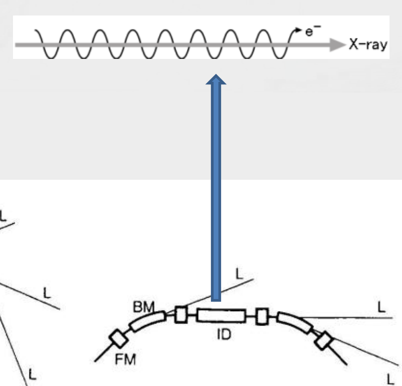


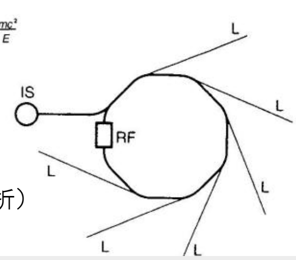


X線源

- 放射光
  - Photon Factory, Spring-8







単色化必要
（単結晶ブラッグ回折）
なお高強度

東京大学
THE UNIVERSITY OF TOKYO

中性子

- 電荷を持たず、質量mを有する中性粒子
- 速度vの中性子のエネルギー E、運動量pは

$$E = \frac{1}{2}mv^2 \qquad p = mv$$

- 中性子は波の性質も持つ

$$\lambda = \frac{h}{p} = \frac{h}{mv}$$

  – 速度による波長の選別

$$f(v) = 4\pi\left(\frac{m}{2\pi k_B T}\right)^{3/2} v^2 \exp\left(-\frac{mv^2}{2k_B T}\right)$$

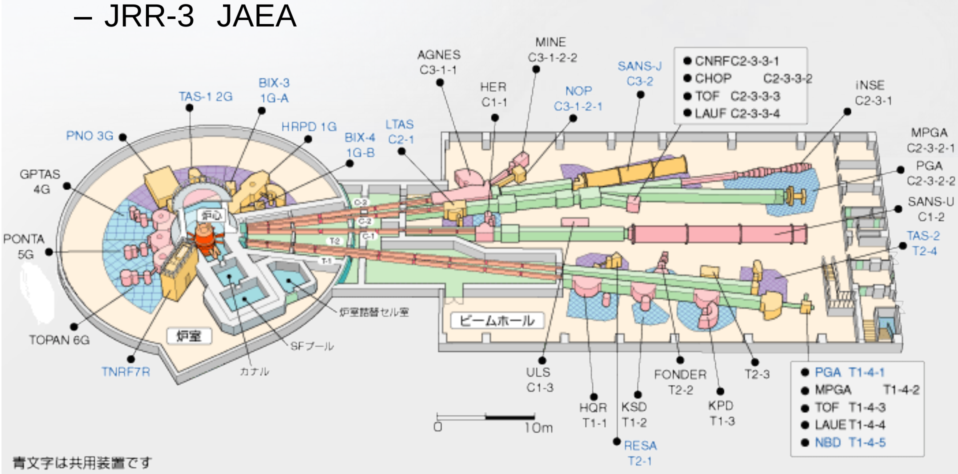
- X線に近い波長帯が利用できる
- 異なるエネルギー
  – エネルギー～meV
  – $k_B T$のオーダー
  – X線は10keV

	Cold	Thermal	Hot
T (K)	25	330	2000
v (m/s)	642	2333	5743
E (meV)	2.16	28.4	172
λ (Å)	6.16	1.696	0.689

東京大学
THE UNIVERSITY OF TOKYO

中性子散乱・反射施設

- 原子炉型中性子
  – JRR-3　JAEA



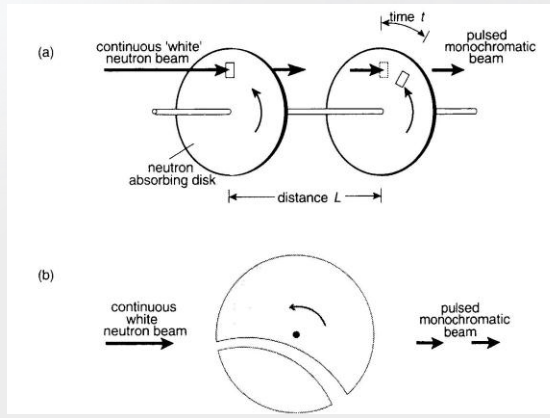
青文字は共用装置です

http://sangaku.jaea.go.jp/3-facility/04-facility/12-jrr3-2.html

中性子散乱・反射施設

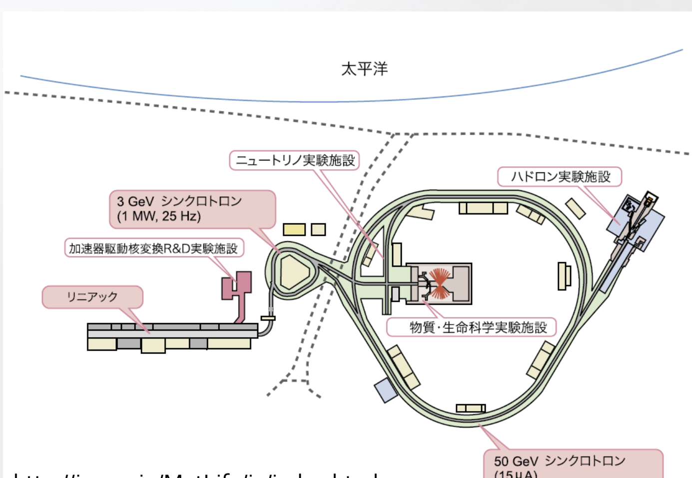
- 原子炉型中性子
  - 連続中性子、波長分散
  - 単色化
  - Velocity Selector
  - 速度の選別で波長を選別できる

$$\lambda = \frac{h}{mv}$$



パルス型中性子施設

- Japan Proton Accelerator Research Complex (JPARC)

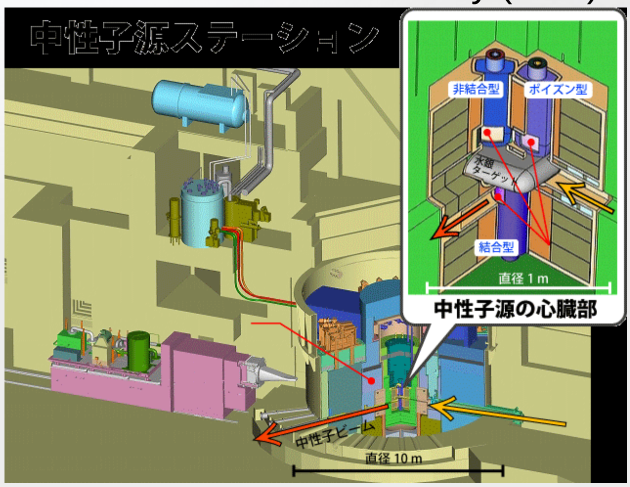


http://j-parc.jp/MatLife/ja/index.html

東京大学
THE UNIVERSITY OF TOKYO

中性子散乱・反射施設

- Materials and Life science Facility (MLF)



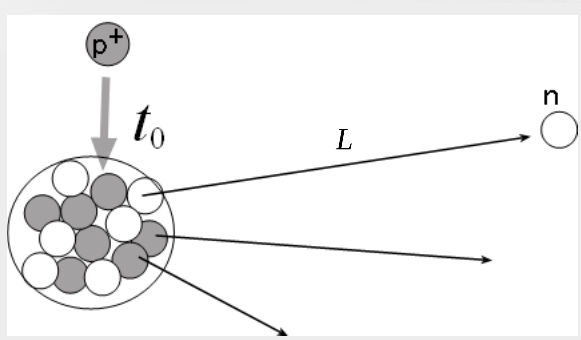
http://j-parc.jp/MatLife/ja/index.html

東京大学
THE UNIVERSITY OF TOKYO

パルス型中性子の特徴

- 時刻0にターゲットから陽子が衝突し中性子が発生
- 飛行時間を計ると波長がわかる（Time-of-flight）

$$\lambda = \frac{h}{p} = \frac{h}{mv} = \frac{h}{mL}(t - t_0)$$



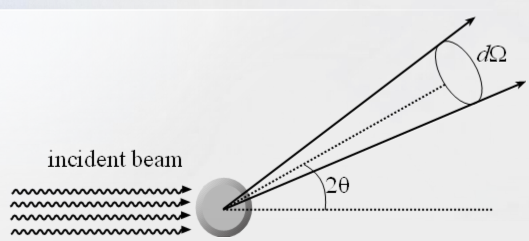
東京大学
THE UNIVERSITY OF TOKYO

散乱とは何か

- 散乱断面積
- 電磁波の散乱
- 中性子の散乱
- 散乱コントラスト
- 散乱とフーリエ変換
- 散乱と自己相関関数
- 小角散乱の例と解析方法

東京大学
THE UNIVERSITY OF TOKYO

散乱断面積(Scattering Cross Section)



$$\frac{d\sigma}{d\Omega} \equiv \frac{J}{J_0} = \frac{\text{1 秒あたり単位立体角の光子数}}{\text{入射ビームの流束}}$$

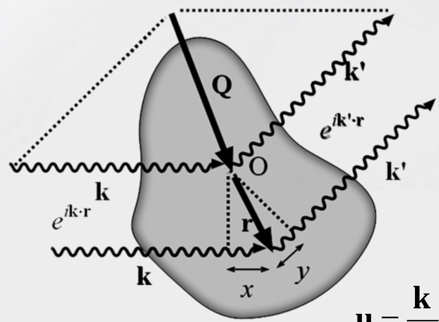
$$\sigma_{tot} = \int_{\text{all directions}} \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right) d\Omega = \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi} \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right) \sin\theta d\theta d\Omega$$

総散乱断面積（面積の次元）

散乱の原理

- 散乱体は連続
- 電子密度関数 $\rho(\mathbf{r})$
- 位相差

$$\Delta\phi = \frac{2\pi(x+y)}{\lambda} = \frac{2\pi}{\lambda}(\mathbf{u}-\mathbf{u}')\cdot\mathbf{r} = (\mathbf{k}-\mathbf{k}')\cdot\mathbf{r} = \mathbf{Q}\cdot\mathbf{r}$$



$$\mathbf{u} = \frac{\mathbf{k}}{|\mathbf{k}|}$$

- 散乱振幅が電子密度関数のフーリエ変換

$$F(\mathbf{Q}) = \int d\mathbf{r}\rho(\mathbf{r})e^{i\mathbf{Q}\cdot\mathbf{r}} \qquad \mathbf{Q} = \frac{4\pi}{\lambda}\sin\theta$$

電子によるX線の散乱

- 原子からの散乱

Polarized

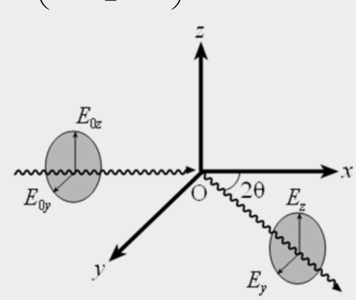
$$E_z = E_{0z}\frac{e^2}{mc^2}\frac{1}{R} \qquad E_y = E_{0y}\frac{e^2}{mc^2}\frac{\cos 2\theta}{R} \qquad r_e = \frac{e^2}{mc^2}$$ 古典電子半径

Unpolarized

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_e = r_e^2\frac{1+\cos^2 2\theta}{2} \qquad b_e = r_e\left(\frac{1+\cos^2 2\theta}{2}\right)^{1/2}$$ 電子の散乱長 (非偏光)

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_e = r_e^2 P$$

$$P = \begin{cases} 1 & \text{放射光　垂直散乱成分} \\ \cos^2 2\theta & \text{放射光　水平散乱成分} \\ \frac{1}{2}(1+\cos^2 2\theta) & \text{非偏光光源} \end{cases}$$



東京大学 THE UNIVERSITY OF TOKYO

原子核による中性子の散乱

- 1つの原子核による中性子の散乱

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_n = b_n^{\ 2}$$ 中性子の散乱長

b_n 散乱角 2θ に依存しない

中性子散乱は
　物質のスピン状態に依存する散乱長
　　ゼロでない核スピンの場合　b^+, b^-
　　ゼロ核スピンの場合　b
　同位体は異なる b を持つ
　非干渉性散乱(incoherent scattering)
　　同位体、スピン状態の乱雑さからの散乱

$$b_{coh} = \langle b \rangle$$

$$b_{inc} = \left(\langle b^2 \rangle - \langle b \rangle^2\right)^{1/2}$$

$$\sigma_{coh} = 4\pi \langle b \rangle^2$$

$$\sigma_{inc} = 4\pi \left(\langle b^2 \rangle - \langle b \rangle^2\right)$$

東京大学 THE UNIVERSITY OF TOKYO

原子からの散乱長

- X線（電子による）散乱
  - 散乱長∝原子番号
- 中性子（原子核による）散乱
  - 元素に対しての感度が異なる
  - スピン状態に依存
  - マイナスの散乱長
    - 位相の180° 反転
  - 水素が特異値
  - 水素—重水素の散乱長差
    - コントラスト強調・コントラスト変調

	Atomic Number	b_{coh} 10^{-12}cm	σ_{coh} 10^{-24}cm^2	σ_{inc} 10^{-24}cm^2	$r_e f(s)$ s=0
^{1}H	1	−0.37	1.76	79.9	0.28
^{2}H	1	0.667	5.59	2.04	0.28
C	6	0.665	5.55	0.001	1.69
N	7	0.936	11.01	0.49	1.97
O	8	0.58	4.23	0	2.25
^{19}F	9	0.565	4.02	0.001	2.53
^{23}Na	11	0.363	1.66	1.62	3.09
Si	14	0.415	2.16	0.015	3.95
^{31}P	15	0.513	3.31	0.006	4.23
Si	16	0.285	1.02	0.007	4.5
Cl	17	0.958	11.53	5.2	4.85
K	19	0.371	1.73	0.25	5.3
V	23	−0.04	0.018	5.19	6.5
Ni	28	1.03	13.3	5.2	7.9
Br	35	0.68	5.8	0.1	9.8

自己相関関数(Autocorrelation Function)

- 散乱振幅と散乱長密度分布$\rho(\mathbf{r})$ はフーリエ変換、逆変換で結ばれている。

$$F(\mathbf{q}) = \int d\mathbf{r}\rho(\mathbf{r})e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}}$$

- 散乱強度のフーリエ変換は自己相関関数である。

$$I(\mathbf{q}) = F(\mathbf{q})\cdot F^*(\mathbf{q}) = \int_V d\mathbf{u}'\rho(\mathbf{u}')e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{u}'}\int_V d\mathbf{u}\rho(\mathbf{u})e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{u}}$$

$\mathbf{r} = \mathbf{u}' - \mathbf{u}$ と定義すると

$$I(\mathbf{q}) = \int_V \left[\int_V d\mathbf{u}\rho(\mathbf{u})\rho(\mathbf{u}+\mathbf{r})\right]e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}}d\mathbf{r}$$

$$= \int_V \Gamma_\rho(\mathbf{r})e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}}d\mathbf{r}$$

自己相関関数である

$$\Gamma_\rho(\mathbf{r}) = \int_V d\mathbf{u}\rho(\mathbf{u})\rho(\mathbf{u}+\mathbf{r})$$

東京大学 THE UNIVERSITY OF TOKYO

散乱に関係する量の関連

$$F(\mathbf{q}) = \int d\mathbf{r}\rho(\mathbf{r})e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}}$$

$$\begin{tikzcd}
\rho(\mathbf{r}) \arrow[r, shift left, "\text{フーリエ変換}"] \arrow[d, "{\begin{array}{l}\text{自己相関関数を計算}\\ \Gamma_\rho(\mathbf{r}) = \int_V d\mathbf{u}\rho(\mathbf{u})\rho(\mathbf{u}+\mathbf{r})\end{array}}"'] & F(\mathbf{q}) \arrow[l, shift left, "\text{フーリエ逆変換}"] \arrow[d, "{\begin{array}{l}\text{二乗を計算}\\ I(\mathbf{q}) = F(\mathbf{q})\cdot F^*(\mathbf{q})\end{array}}"] \\
\Gamma_\rho(\mathbf{r}) \arrow[r, shift left, "\text{フーリエ変換}"] & I(\mathbf{q}) \arrow[l, shift left, "\text{フーリエ逆変換}"]
\end{tikzcd}$$

$$I(\mathbf{q}) = \int_V \Gamma_\rho(\mathbf{r})e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}}d\mathbf{r}$$

東京大学
THE UNIVERSITY OF TOKYO

小角散乱　形状からの散乱（形状因子）

- Braggの式から、散乱体の大きさdが波長λに比べて大きくなると、小角θに散乱が現れる。

$$\sin\theta = \frac{\lambda}{2d}$$

- 小角散乱では、ある物質内の電子は一様であると考えてよい。
- 例えば、球形の物体からの散乱は、球の半径が原子や波長よりも遥かに大きい条件下で

$$F(q) = \int_0^\infty \rho(r) 4\pi r^2 \frac{\sin qr}{qr} dr$$

$$= \rho_0 \left(\frac{4\pi R^3}{3} \right) \frac{3(\sin qR - qR\cos qR)}{(qR)^3}$$

$$I(q) = \rho_0^2 \left(\frac{4\pi R^3}{3} \right)^2 \frac{9(\sin qR - qR\cos qR)^2}{(qR)^6}$$

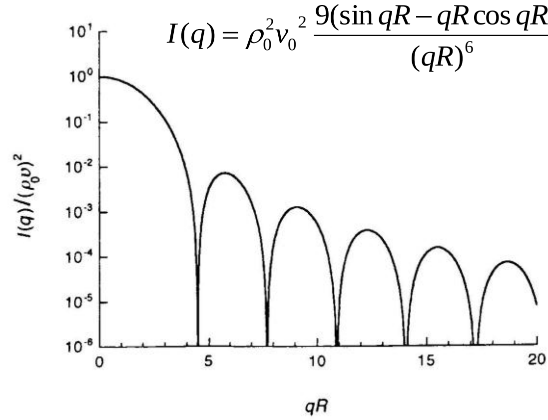
半径Rの球

東京大学
THE UNIVERSITY OF TOKYO

小角散乱　形状からの散乱（形状因子）

- 球からの散乱

$$I(q) = \rho_0^2 v_0{}^2 \frac{9(\sin qR - qR\cos qR)^2}{(qR)^6}$$



- 実測した散乱と形状因子の計算結果のフィッティング
- 溶液中の球状ミセルの半径
- 統計平均が得られる

東京大学 THE UNIVERSITY OF TOKYO

小角散乱　形状からの散乱（形状因子）

- 様々な形状の計算結果　　　（v は体積）
  - 球　半径R

$$I(q)=\rho_0^2 v^2 \frac{9(\sin qR - qR\cos qR)^2}{(qR)^6}$$

  - 細い棒　断面積a　長さL　ただし、$L \gg a$

$$I(q)=\rho_0^2 v^2 \frac{2}{qL}\left[\mathrm{Si}(qL)-\frac{1-\cos qL}{qL}\right] \qquad \mathrm{Si}(x)=\int_0^x \frac{\sin u}{u}du$$

  - 薄い円盤

$$I(q)=\rho_0^2 v^2 \frac{2}{q^2R^2}\left[1-\frac{J_1(2qR)}{qR}\right]$$

$J_1(x)$　は第一種ベッセル関数

  - 高分子鎖（ガウス鎖）

$$I(q)=\rho_0^2 v^2 \left[\frac{2\left(e^{-q^2R_g^2}+q^2R_g^2-1\right)}{(q^2R_g^2)^2}\right]$$

デバイ関数
（ガウス関数のフーリエ変換）

東京大学 THE UNIVERSITY OF TOKYO

小角散乱の解析　近似解

- Guinier領域
  - 小さなqの極限（$qR_g \ll 1$）では、散乱強度は以下のように近似される.形状によらず、慣性半径R_gを統計的に決定できる

$$I(q)=\rho_0^2 v^2 \exp\left(-\frac{1}{3}q^2R_g^2\right)$$

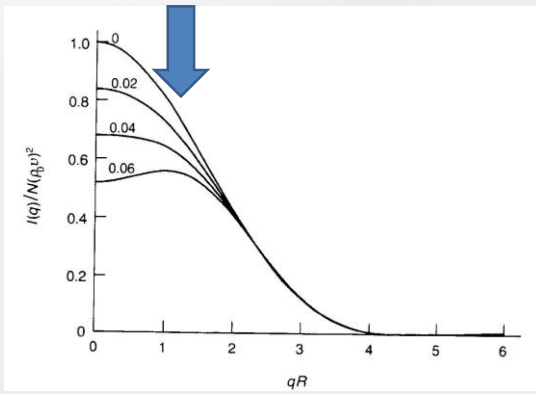
- Porod領域
  - 大きなqの極限（$qR_g \gg 1$）では、（界面が急峻な場合）散乱強度は以下のようにq^{-4}で減少する.界面の構造を検証できる.

$$I(q)=\xrightarrow{q\longrightarrow\infty}\frac{2\pi(\Delta\rho)^2 S}{q^4}$$

東京大学 THE UNIVERSITY OF TOKYO

小角散乱の解析　多粒子からの散乱

- 形状因子は1粒子からの理想的な散乱
- 多粒子系では、粒子間相関からの散乱の寄与
  - 球からの散乱の濃度依存性



東京大学 THE UNIVERSITY OF TOKYO

小角散乱の解析　Form & Structure Factors

- 形状因子（Form Factor, $F(\mathbf{q})$）
  - i.e. 球状粒子

$$I(q) = \rho_0^2 v^2 \frac{9(\sin qR - qR\cos qR)^2}{(qR)^6}$$

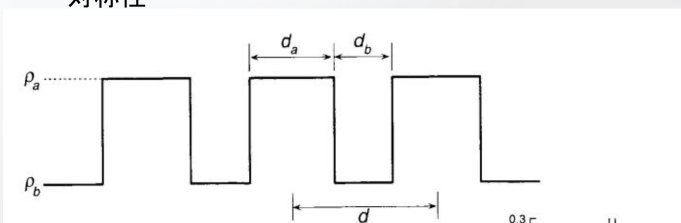
- 構造因子（Structure Factor, $Z(\mathbf{q})$）
  - i.e.複数の球状粒子がどのように充填しているか？
- 散乱強度は2成分に分離される

$$I(\mathbf{q}) = |F(\mathbf{q})|^2 |Z(\mathbf{q})|^2$$

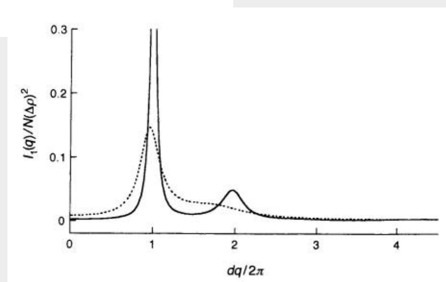
- $F(\mathbf{q})$, $Z(\mathbf{q})$をそれぞれ計算して$I(\mathbf{q})$を求め、実験と比較する

小角散乱の解析　構造因子

- ラメラの構造因子（Structure Factor, $Z(\mathbf{q})$）
  - 繰り返し構造
  - 対称性



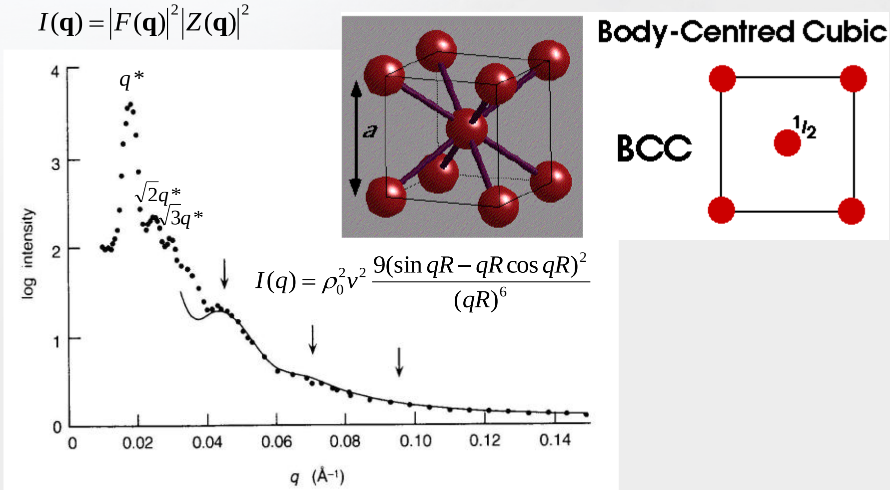
$$d = \frac{2\pi}{q^*}$$



小角散乱の解析　Form & Structure Factors

- 体芯立法格子（BCC）を組んだブロックコポリマーの球状ドメイン

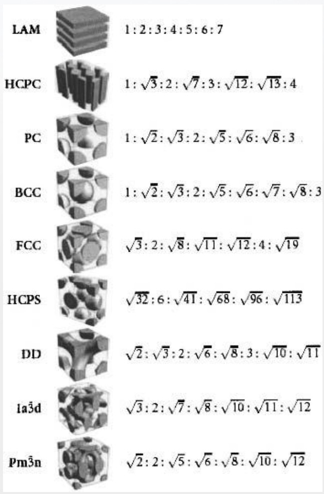
$$I(\mathbf{q}) = |F(\mathbf{q})|^2 |Z(\mathbf{q})|^2$$

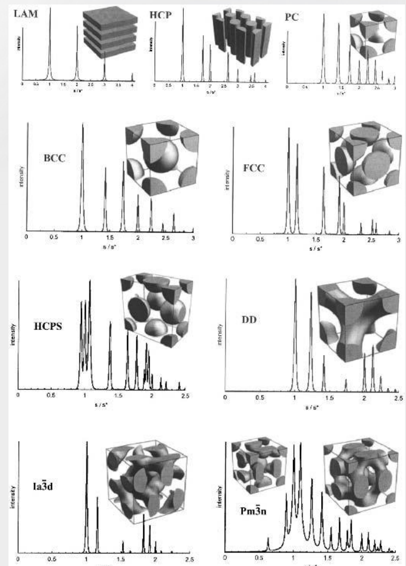


東京大学 THE UNIVERSITY OF TOKYO
Block Copolymer Morphology
Chapter Authors: Nikos Hadjichristidis, Stergios Pispas, George Floudas

小角散乱の解析　構造因子の推定

- 構造因子
  - 様々な対称性とピークパターン





東京大学 THE UNIVERSITY OF TOKYO

小角散乱の解析　構造因子の推定の問題

- 未知構造の構造からの散乱パターンからの構造決定は困難
  - 構造を予測して計算をすることが必要
  - 位相問題

$$\rho(\mathbf{r}) \underset{\text{フーリエ逆変換}}{\overset{\text{フーリエ変換}}{\rightleftarrows}} F(\mathbf{q}) \xrightarrow[\;]{\text{二乗を計算}\; I(\mathbf{q}) = F(\mathbf{q}) \cdot F^{*}(\mathbf{q})} I(\mathbf{q})$$

- 顕微鏡など実空間観察との組み合わせが必要
  - 溶液系など実空間観察が困難な場合もある

X線・中性子の反射

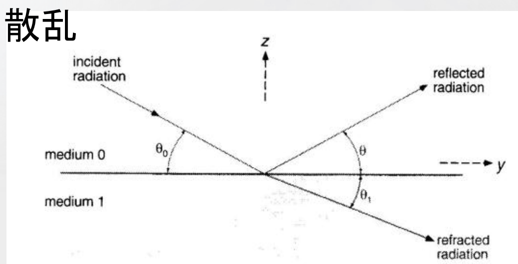
- 反射の原理と反射率
- 中性子反射率計
- 中性子反射率を用いた実験例

X線・中性子線の反射・屈折

- 反射：特殊な条件下での散乱
- 光学の応用が可能
  - Snellの法則とFresnelの法則

$$\cos\theta_0 = \cos\theta$$

$$n_0 \cos\theta_0 = n_1 \cos\theta_1$$



- 光との違い
  - 多くの物質のX線中性子に対しての屈折率 n は n<1
  - 空気からの低角入射で全反射を起こす

$$\cos\theta_c = n_1 / n_0 = n_1$$

- 波数ベクトルのz成分表面⊥成分のみ考える $|\mathbf{k}| = \frac{2\pi n}{\lambda}$

$$k_{z1} = \left(k_{z0}^2 - k_{zc}^2\right)^{1/2}$$

東京大学
THE UNIVERSITY OF TOKYO

X線・中性子線の反射率

- 反射率の導出

$F(z) = \exp(ik_{z0}z)$

反射波の振幅がr倍透過波の振幅t倍とすると

$F_0(z) = \exp(ik_{z0}z) + r\exp(-ik_{z0}z)$

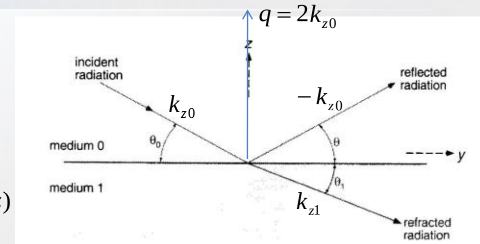
$F_1(z) = t\exp(ik_{z1}z)$

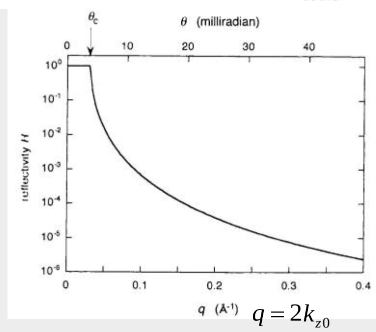
$F(z) \quad \dfrac{dF(z)}{dz}$ は0-1界面で連続

$$r = \frac{k_{z0} - k_{z1}}{k_{z0} + k_{z1}}$$

$$\boxed{k_{z1} = \left(k_{z0}^2 - k_{zc}^2\right)^{1/2}}$$

反射率 $R = r^2 = \left|\dfrac{k_{z0} - k_{z1}}{k_{z0} + k_{z1}}\right|^2 = \left|\dfrac{k_{z0} - \sqrt{k_{z0}^2 - k_{zc}^2}}{k_{z0} + \sqrt{k_{z0}^2 - k_{zc}^2}}\right|^2$





東京大学
THE UNIVERSITY OF TOKYO

X線・中性子線の反射率

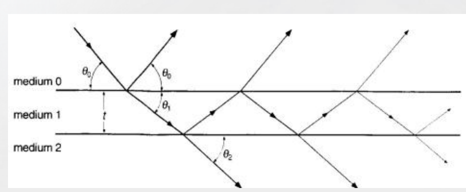
- 2層膜の反射率の導出

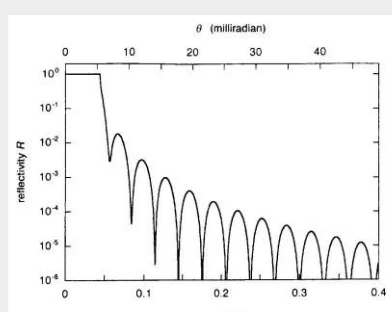
$$\hat{r}_{12} = \frac{r_{12} + r_{23}\exp(-i2k_{z2}t_2)}{1 + r_{12}r_{23}\exp(-i2k_{z2}t_2)}$$

$$r = \frac{r_{01} + \hat{r}_{12}\exp(-i2k_{z1}t_1)}{1 + r_{01}\hat{r}_{12}\exp(-i2k_{z1}t_1)}$$

$$R = |r|^2$$

- 繰り返しにより多層膜の反射率と薄膜内部での振幅が計算可能





東京大学 THE UNIVERSITY OF TOKYO

多層膜からの反射

$$E_j(x,z) = (A_j^+ e^{ik_{zj}z} + A_j^- e^{ik_{zj}z}) e^{i(\varpi t - k_{xj}x)}$$

$$= (U_j^+(z) + U_j^-(z)) e^{i(\varpi t - k_{xj}x)}$$

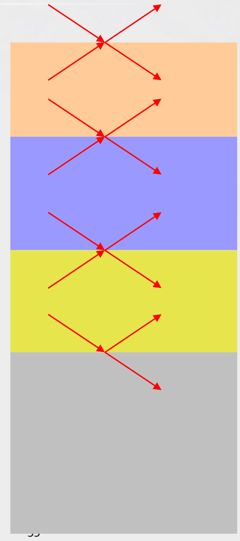
$$\begin{pmatrix} U_j^+(0) \\ U_j^-(0) \end{pmatrix} = \mathbf{R}_{0,1}\mathbf{T}_1\mathbf{R}_{1,2}\mathbf{T}_2 \cdots \mathbf{R}_{sub-1,sub} \begin{pmatrix} U_j^+(z_{sub}) \\ U_j^-(z_{sub}) \end{pmatrix}$$

$$\mathbf{R}_{j,j+1} = \begin{pmatrix} p_{j,j+1} & m_{j,j+1} \\ m_{j,j+1} & p_{j,j+1} \end{pmatrix}$$

$$\mathbf{T}_j = \begin{pmatrix} e^{-ik_{z,j}h} & 0 \\ 0 & e^{ik_{z,j}h} \end{pmatrix}$$

$$p_{j,j+1} = \frac{k_{z,j} + k_{z,j+1}}{2k_{z,j}}$$

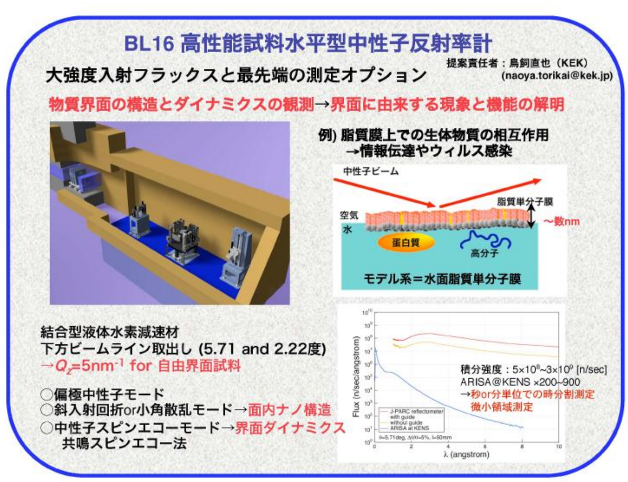
$$m_{j,j+1} = \frac{k_{z,j} - k_{z,j+1}}{2k_{z,j}}$$



東京大学 THE UNIVERSITY OF TOKYO

中性子散乱装置(建設中)と反射率装置(BL-16)

- 中性子反射率装置



http://j-parc.jp/MatLife/ja/instrumentation/bl16/BL16.html

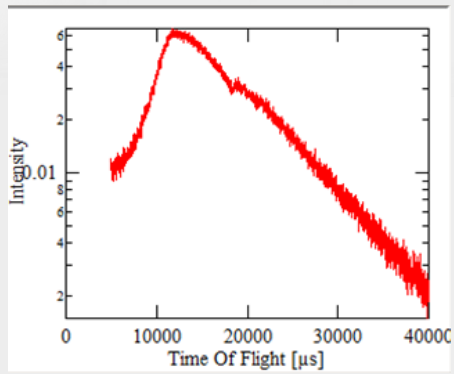
東京大学
THE UNIVERSITY OF TOKYO

中性子反射率

- 入射中性子スペクトルを測定し反射中性子スペクトルを規格化する

$$R(\lambda) = \frac{I(\lambda)}{I_0(\lambda)}$$

$$q = \frac{4\pi}{\lambda} \sin\theta$$

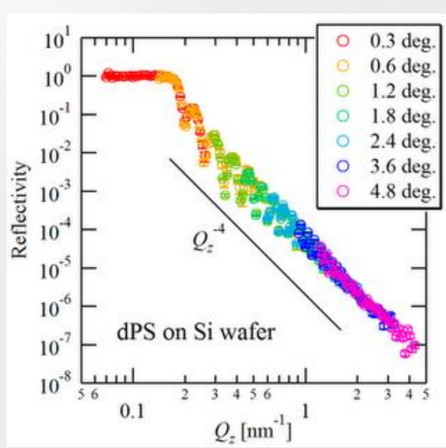


http://j-parc.jp/MatLife/ja/instrumentation/bl16/BL16.html

東京大学
THE UNIVERSITY OF TOKYO

中性子散乱・反射施設

- パルス型中性子
  - JPARC



http://j-parc.jp/MatLife/ja/instrumentation/bl16/BL16.html

東京大学 THE UNIVERSITY OF TOKYO

反射率測定の実例

東京大学 THE UNIVERSITY OF TOKYO

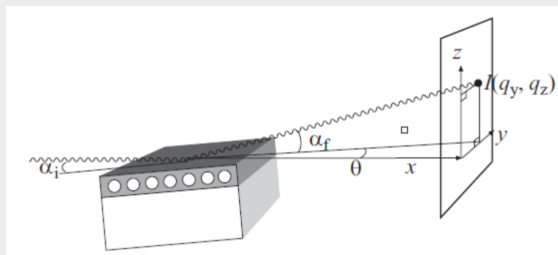
斜入射小角(X線)散乱

- 実験のジオメトリ
- 反射と散乱を組み合わせた実験法
- 複雑な理論的背景
- 高分子多孔体での解析例

東京大学
THE UNIVERSITY OF TOKYO

薄膜内の散乱体（斜入射小角散乱）

- 薄膜内に散乱体があった場合には、反射・屈折に加えて、散乱体による散乱が起こる。
- 散乱体へはX線がどのように届くか自明ではない
- 直接・あるいは反射後に散乱体で散乱される
- あるいは、散乱されたX線の反射を考える必要がある。



東京大学
THE UNIVERSITY OF TOKYO

多層膜からの反射

$$E_j(x,z) = (A_j^+ \mathrm{e}^{ik_{zj}z} + A_j^- \mathrm{e}^{ik_{zj}z})\mathrm{e}^{i(\varpi t - k_{xj}x)}$$
$$= (U_j^+(z) + U_j^-(z))\mathrm{e}^{i(\varpi t - k_{xj}x)}$$

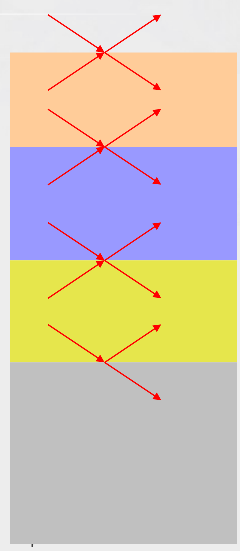
$$\begin{pmatrix} U_j^+(0) \\ U_j^-(0) \end{pmatrix} = \mathbf{R}_{0,1}\mathbf{T}_1\mathbf{R}_{1,2}\mathbf{T}_2 \cdots \mathbf{R}_{sub-1,sub}\begin{pmatrix} U_j^+(z_{sub}) \\ U_j^-(z_{sub}) \end{pmatrix}$$

$$\mathbf{R}_{j,j+1} = \begin{pmatrix} p_{j,j+1} & m_{j,j+1} \\ m_{j,j+1} & p_{j,j+1} \end{pmatrix}$$

$$\mathbf{T}_j = \begin{pmatrix} e^{-ik_{z,j}h} & 0 \\ 0 & e^{ik_{z,j}h} \end{pmatrix}$$

$$p_{j,j+1} = \frac{k_{z,j} + k_{z,j+1}}{2k_{z,j}}$$

$$m_{j,j+1} = \frac{k_{z,j} - k_{z,j+1}}{2k_{z,j}}$$

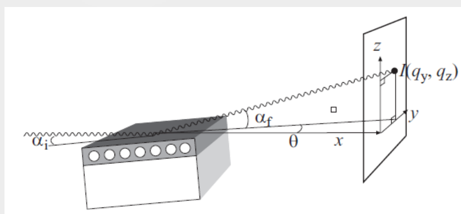


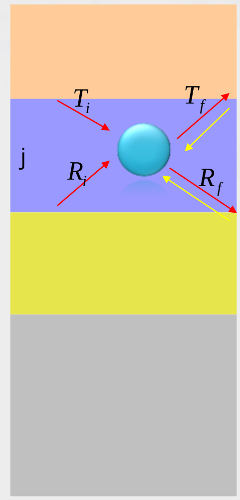
東京大学
THE UNIVERSITY OF TOKYO

任意の層での振幅TRが計算できる

A_j^-
A_j^+ を入射波に対して求めた値 → T_i
R_i

A_j^-
A_j^+ ディテクター位置から遡って（Time Reversal State)求めた値 → T_f
R_f





東京大学
THE UNIVERSITY OF TOKYO

DWBAによるGISAXSの定量的解析

- 散乱振幅を用いた厳密解

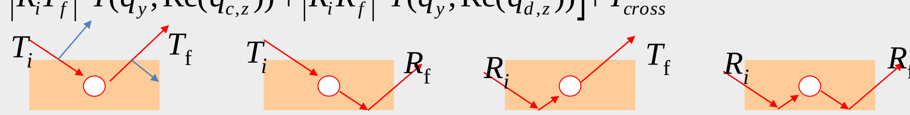
$$I(q_y,q_z)=\frac{1-e^{-2\mathrm{Im}(q_z)}}{32\pi^2\,\mathrm{Im}(q_z)}\Big|T_iT_fF(q_y,\mathrm{Re}(q_{a,z}))+T_iR_fF(q_y,\mathrm{Re}(q_{b,z}))$$

$$+R_iT_fF(q_y,\mathrm{Re}(q_{c,z}))+R_iR_fF(q_y,\mathrm{Re}(q_{d,z}))\Big|^2$$

- 散乱強度による近似解（交差項無視）

$$I(q_y,q_z)=\frac{1-e^{-2\mathrm{Im}(q_z)}}{32\pi^2\,\mathrm{Im}(q_z)}\Big[\left|T_iT_f\right|^2I(q_y,\mathrm{Re}(q_{a,z}))+\left|T_iR_f\right|^2I(q_y,\mathrm{Re}(q_{b,z}))$$

$$+\left|R_iT_f\right|^2I(q_y,\mathrm{Re}(q_{c,z}))+\left|R_iR_f\right|^2I(q_y,\mathrm{Re}(q_{d,z}))\Big]+I_{cross}$$



$q_{a,z}=k_{z,f}-k_{z,i}$ $q_{b,z}=-k_{z,f}-k_{z,i}$ $q_{c,z}=k_{z,f}+k_{z,i}$ $q_{d,z}=-k_{z,f}+k_{z,i}$

東京大学
THE UNIVERSITY OF TOKYO

GISAXSの実例

東京大学
THE UNIVERSITY OF TOKYO

まとめ

- 反射率法、斜入射小角散乱の組み合わせにより様々な埋もれた界面の解析が可能になりつつある。
- 実験的なサポート(実験装置、解析プログラム)はまだまだ未整備である。
- 実験は容易であるが定量的な解析は背景の理論の理解を要求される。
- 今後は一般のユーザーにも使用できるような環境が整うことが切望される。