

X線反射率解析における可干渉成分の取り扱い

The treatment of the coherent ingredient in the X-ray reflectivity analysis

神戸大 研究基盤センター 藤居 義和

Kobe Univ., Yoshikazu Fujii

E-mail: fujiiyos@kobe-u.ac.jp

X線反射率法は、多層膜の表面・界面粗さ及びその膜厚などの構造を非破壊的に求める分析法として広く利用されている。¹⁾そして、実用化されたX線反射率測定装置においては、測定結果を解析するための理論式として Parratt の多層膜モデル²⁾に Nevot-Croce のラフネスの式²⁾を組み合わせた式が一般的に使用されている。しかし、この式を用いたX線反射率の計算は、表面・界面粗さを粗くしたほうが干渉効果による振動振幅率の大きいカーブを示してしまうなど、奇妙な結果を引き起こしていた。そこで、この原因を探り、より実用的なX線反射率理論解析式を求める研究を行っている。

X線を物質に照射し弾性散乱したX線強度を、測定系に最も忠実な理論式を構築して解析しようとするなら、入射波、散乱波ともに平面波の重ね合わせとして、照射物質の複素誘電率空間分布に対する Maxwell 方程式を全空間において解けばよいが、X線光源もX線検出器も有限の大きさを持っているので、その情報を、入射X線の可干渉長、照射物質の可干渉領域及び観測領域に置き換え、さらに、その範囲を無限大に広げた仮定のもとで解いているのが現状である。また、Maxwell 方程式を厳密に解ける境界条件は、平面など単純なものに限られているため、動力的な取扱いは、Darwin³⁾や Parratt²⁾の理論のように単純化モデルにしか適用出来ない。そこで、実際の解析対象について、ある程度簡略化したモデルを考えそれに適用できる近似を行った理論が開発されている。粗さを持った表面・界面からの反射についての、Parratt の式に Nevot-Croce の式を組み合わせた式²⁾や、単結晶表面からの反射・回折についての、Darwin の式を拡張した Takahashi の動力的回折理論(3波近似)⁴⁾などである。いずれの場合も近似が入っているが、界面の両側でのX線のエネルギー保存の扱いとその多層膜への適用に違いが見られ、この点に Parratt と Nevot-Croce の式が奇妙な結果を引き起こしていた原因が存在する。即ち Parratt の多層膜モデルでは界面の両側で入射波と透過波・反射波の2波のエネルギーは完全に保存されることが前提となっているのに、エネルギー保存を保証しない Nevot-Croce のラフネスの式を組み合わせたことに矛盾を含んでいる。即ち多層膜での多重反射においてそれぞれの界面で散漫散乱した非干渉成分を無視したことが、Parratt と Nevot-Croce の式の奇妙な結果に繋がっている。しかし、この式も、界面に平行な方向に構造を持たず界面に垂直な方向にのみ電子密度が変化するような特殊な界面を持つ多層膜には適用可能である。この場合、粗さを持つ一つの界面を、平坦な界面を持つ極めて薄い層の集まりと考えて計算を行うマルチスライス法と同様の結果を導く。この計算では界面で非干渉成分となる散漫散乱を生じないことが前提となっている。しかし、現実の多層膜は界面に構造を持ち散漫散乱を生じる。そこで、Parratt と Nevot-Croce の式を改良したX線反射率の解析式を開発した。⁵⁾

$$R_{j-1,j} = \frac{\Psi'_{j-1,j} + (\Phi'_{j-1,j} \Phi'_{j-1,j} - \Psi'_{j-1,j} \Psi'_{j-1,j}) R_{j,j+1}}{1 - \Psi'_{j-1,j} R_{j,j+1}} \quad \Psi'_{j-1,j} = \frac{k_{j-1,z} - k_{j,z}}{k_{j-1,z} + k_{j,z}} Q_{j-1,j} \quad \Psi'_{j,j-1} = -\Psi'_{j-1,j} \quad \Phi'_{j-1,j} = \frac{2k_{j-1,z}}{k_{j-1,z} + k_{j,z}} P_{j-1,j} \quad \Phi'_{j,j-1} = \Phi'_{j-1,j} \frac{k_{j,z}}{k_{j-1,z}}$$

フレネル係数 Ψ' Φ' にはそれぞれ減衰係数 $Q_{j-1,j} = \exp(-2k_{j-1,z} k_{j,z} \sigma_{j-1,j}^2)$ $P_{j-1,j} = \exp\{-[C_1(k_{j-1,z} - k_{j,z})^2 + C_2 k_{j-1,z} k_{j,z}]\sigma_{j-1,j}^2\}$ が掛けてあり散漫散乱した非干渉成分によるエネルギーの散逸を加味している。しかし、この式には Bragg 反射による回折波の成分は入れておらず多結晶多層膜のような層内構造を持つ多層膜には適用出来ない。多層膜界面間の層内は構造を持たない均質な媒体であることを仮定している。上で示したフレネル反射係数の減衰率は粗い界面においてよく使用されているものであるが、フレネル透過係数の減衰率は界面構造によって大きく異なることが理論的に示されているため、パラメータ C_1 , C_2 で示される量で近似している。これらの減衰率を、界面の凹凸構造の分布を示す界面平行方向の相関関数 $C_{j-1,j}$ を使って $P_{j-1,j} = P_{j-1,j}(k_{j-1,z}, k_{j,z}, \sigma_{j-1,j}, C_{j-1,j}(k_{j-1,x}, k_{j,x}))$ として表し、非干渉成分の寄与率を界面構造と結びつけることによって、実際のX線反射率測定の結果をより正確に説明できる解析式を求める。最近、X線反射率測定以外の分析法による検証として、断面TEM観察やAFM測定、RBS測定など幾つかの測定法との比較を行い、界面粗さの有効な振幅が入射角に依存することを示唆する結果を得た。これらの結果はX線反射率測定強度の解析においてX線照射における可干渉領域の大きさをも考慮すべきであることを示唆しており、これらの結果を含めてX線反射率理論解析式の改良について詳述する。

- 1) 桜井健次 編: X線反射率入門, (2009) (講談社サイエンティフィック) .
- 2) L. G. Parratt: *Phys. Rev.* **95**, 359 (1954)., L. Nevot, P. Croce: *Rev. Phys. Appl.* **15**, 761 (1980).
- 3) C. G. Darwin: *Philos. Mag.* **27**, 315 (1914)., C. G. Darwin: *Philos. Mag.* **27**, 675 (1914).
- 4) T. Takahashi and S. Nakatani: *Surf. Sci.*, **326**, 347 (1995).
- 5) Y. Fujii: *Mater. Sci. Eng.* **24**, 012009 (21pp) (2011)., Y. Fujii: *PDJ*, **28**, 100 (2013).