

X線反射率，表面X線散乱による埋もれた界面の解析における位相問題

- 新光源への期待

X線反射率法は100年以上の長い歴史を持ち、確立された技術として多くの薄膜・多層膜の解析に応用されているが、古くて新しい未解決問題の1つとして位相問題が知られている。X線反射率法のデータ解析は、反射強度のプロファイル $R(q)$ から深さ方向の電子密度分布 $\rho(z)$ を求める逆問題であるが、一般的に、その解は一意的には決まらない。X線反射率を $R(q) = |r(q) \exp(i\phi(q))|^2$ のように書き、簡単のために運動学的近似を使うと $r(q) \exp(i\phi(q))$ は、深さ方向の電子密度分布の微分のフーリエ変換で与えられるから、その逆変換により $\rho(z) \propto \int_0^z \int_{-\infty}^{\infty} (r(q) \exp(i\phi(q))) \exp(iqz) dq dz$ のようになる。ここで位相項 $\phi(q)$ の部分がまったく自由に選べるとすると、かなり異なる $\rho(z)$ でも同じX線反射率のプロファイル $R(q)$ を与えることが確かめられるであろう。このため試料に関する事前情報があまりにも限られるときには、X線の強度測定のみでは、逆問題の答えは何通りもあることになり、誤った結論を得てしまう危険性がある。実際の解析の多くはモデルを仮定したうえでのパラメータフィッティングによって行われるが、そのモデル自体の妥当性が心配であり、複雑で構造未知の試料を検討するためには、モデルフリーの解析技術が求められる。このような観点で、位相問題は重要である。他方、何らかの形で位相を測定する技術は知られており、また失われた位相情報がある条件の下で回復させる方法も知られている。それとは反対に位相がわかっただけでは位相問題は解決できないという指摘もある (Emil Wulf, Phys. Rev. Lett. 103, 075501 (2009))。近年、わが国も含め、世界各地で超低エミッタンス放射光源やX線自由電子レーザー等の新光源が続々登場しており、コヒーレンスなどの特徴を有効に生かし、あるいは積極的に制御することにより、新たな進歩も期待される。本シンポジウムでは、以上のような背景のもとで、表面や埋もれた界面におけるX線の反射や散乱における位相問題について、モデルフリー解析等の現状と課題、今後の研究の方向性を討論した。

桜井健次 (物材機構) は「X線反射率データ解析ブレークスルーの可能性」と題するイントロダクトリートークを行い、逆問題をモデルフリーに解こうとする際の困難の周辺にある検討課題や、新光源の利用、特にコヒーレンスに着目した埋もれた界面の解析の新しい可能性に関する研究について問題提起した。

高橋敏男 (東大物性研) は、表面X線回折における位相問題解決法について現状と展望について説明し、埋もれた界面や表面の原子配列をモデルフリーに求めることの重要性を指摘した。新光源のコヒーレンスを利用した測定では試料の完全性からのずれを見ることになるのでその特徴を生かした測定を行う必要があること、また、高輝度・高フラックスを生かせばこれまでの測定・解析を更に進展できることに触れ、新光源の今後の表面X線回折位相問題解決における有用性を述べた。

奥田浩司(京大院工)は、反射小角散乱(GISAS)のデータ解析の現状と課題を説明した。通常の小角散乱とは異なり、薄膜内部での反射を DWBA 理論を用いて解釈する必要があり、その理論は 1990 年代に欧州を中心として大きな進歩を遂げたが、現在もなお実際的な構造未知の試料の解析に問題点を残している。軟 X 線を利用した反射小角散乱では基板の影響をきわめて小さくすることができ、反射配置でありながら、信頼性の高い定量解析を行う有利さがあることを示した。

坂田修身(物材機構)は、X 線定在波法(XSW)を構造解析に利用する立場から振り返り、発表研究の背景、動機を説明した。その上で、位相問題により XSW が資するには実用的な結晶基板に適用が広がることの重要性を指摘し、その取り組みを紹介した。新光源についてはパルス性、フラックスに注目するとともに、検出器やコヒーレント性を利用した集光系の高度化について議論した。

田尻寛男(JASRI)は、表面 X 線回折によるモデルフリー構造解析を実験・解析手法の両側面から説明し、光源の高フラックス化とホログラフィ原理にもとづく解析法開発の重要性を指摘した。新光源のエネルギー幅に着目し、今後の非対称結晶による硬 X 線のワイドバンド分光の有用性を述べた。

和達大樹(東大物性研)は、最近アメリカの X 線自由電子レーザー(XFEL)施設 LCLS で行った時間分解 X 線回折測定について講演し、格子振動が実時間で観測された結果を示した。今後、新光源 XFEL の短パルス性に着目した研究として、物質内部の格子やスピンのダイナミクス観測を提案した。

Jinxing Jiang(筑波大)は、X 線反射率法を拡張し界面の可視化を実現するための技術として有望な反射トモグラフィーについて報告した。実験室系のわずか 15W 出力のマイクロフォーカス X 線源を用い、予備的な画像再構成に成功し、現在は被覆層の下に埋もれた薄膜の層内の様々な欠陥や異物の検出、作りこんだマイクロ構造の検証等の応用実験を計画中である。空間分解能の一層の向上や中性子・放射光を用いた高度な応用実験などが今後の課題であると述べた。

藤居義和(神戸大)は「X 線反射率解析における可干渉成分の取り扱い」と題する講演を行い、X 線反射率による多層膜解析において、界面での可干渉成分の厳密な取扱いの重要性を説明し、X 線コヒーレント長の加味による、界面粗さのより精密な情報を得る手法を示した。

矢代航(東北大多元研)は、X 線回折格子干渉計の原理を利用して、表面敏感配置での極小角散乱の実空間分布イメージング(GIUSAXS イメージング)に成功したことを報告した。将来は小角散乱の実空間分布の可視化にもつながる有望な技術である。新光源の高空

間コヒーレンス度や大強度性を利用することにより、時間分解能および空間分解能の向上が期待される。

白澤徹郎（東大物性研）は、X線 CTR 散乱法を用いた薄膜界面に対する位相回復法について説明した。トポロジカル絶縁体薄膜への応用を紹介して 物性研究への有用性を示した。

全講演の終了後、総合討論が行われ、およそ次の3つの点が指摘された。(1) X線反射率法、表面 X 線回折法、反射小角散乱法、X 線定在波法等の表面や埋もれた界面に敏感な各種の X 線技術における定量解析の課題について、多くの工夫がなされてきている。(2) 位相測定、位相回復の方法の研究は進んでおり、応用も広がっている。それでも、未知構造、予期しない構造のデータの解釈は簡単にできるわけではない。(3) 新光源については、高輝度性は重要であるが、試料に与える損傷に注意を払い、またコヒーレンスについても、スペックル散乱やモワレ縞を積極的に利用する場合を除き、他の測定では妨害にならないように留意する必要がある。

本シンポジウムは、応用物理学会「埋もれた界面の X 線中性子解析研究会」により提案され、ビーム応用大分科および X 線技術中分類からの全面的な支援を受けて開催された。2001 年 12 月以来連続的に開催されている同種の研究会としては 20 回目である。応用物理学会のシンポジウムとしては 2002 年秋、2005 年春、2006 年秋、2007 年秋、2009 年春、2010 年春、2011 年春（震災のため 7 月にずらして開催）、2012 年春の過去 8 回のシンポジウムおよび 2013 年秋の JSAP-MRS 合同シンポジウムに続いて 10 回目にあたる。今後も新しい研究テーマの開拓を志向し、異分野で活動する研究者との交流を重視した会合を企画する予定である。毎月もしくは隔月でミニ研究会を都内で連続開催する計画も進めている。ご関心のある読者には、ぜひ本研究会に入会され、メーリングリストで情報を共有されることをお薦めする。詳しくは、ホームページ(<http://www.nims.go.jp/xray/ref/>)をご参照下さい。

(物質・材料研究機構 桜井健次)