

# X線反射率法の応用について

## — 薄膜・多層膜の埋もれた層・界面の密度，膜厚，ラフネスの決定 —

桜井 健次

X線反射率法は，薄膜・多層膜の深さ方向の構造を非破壊的かつ簡便に与える実用的な技術である。微小角で単色X線を試料表面に入射させ，その角度を変化させたとき，特徴的な干渉縞を含む強度プロファイルとして取得され，理論式と実験値のフィッティングやフーリエ解析によって，各層の密度・厚さ，表面および各界面のラフネスを決定することができる。原子層レベルのわずかな変化を敏感に検出できる点は特に優れている。また，結晶構造などには依存せず，平坦かつ平滑な表面・界面でありさえすれば，どんな構造のどんな物質の薄膜・多層膜にも適用できる。本稿では，日々の研究開発にX線反射率法をどのように活用できるかという点を主に解説する。

**Keywords:** X-ray reflectivity, total reflection, specular reflection, buried layer, buried interface, surface and interface, multilayered thin films, critical angle, interference fringe, layer thickness, surface roughness, interface roughness

### 1. ま え が き

ナノサイエンス・ナノテクノロジーの研究開発においては，表面に露出しているものばかりではなく，何がしかの物質によって覆われた“埋もれた”ナノ構造を扱う必要がある。また人工的に形成された積層構造の各層や各界面は，常に上層に埋もれた状態にある。こうした埋もれた界面には，半導体，磁性体デバイス，ソフトマテリアル，バイオシステムの薄膜はもとより，さまざまなコーティングにおける界面，接着界面，さらには一般的に異種物質を接合させた際の界面など，非常にいろいろなものを挙げるができる。

こうした埋もれた界面はどのようにして解析すればよいのであろうか。表面に露出していない以上，主要な表面分析の手法や顕微鏡技術にも限界がある。最近では，非線形レーザー分光法なども注目を集めているが，光学的に不透明な対象も含めて考えると，X線や中性子のように表面にも，表面より深い領域にも，適用可能なプローブの活用が必要である。中でもX線反射率法は，内部に多層構造を有する場合にも，そのそれぞれの層や界面についての0.1～数百 nm レベルの深さ方向の構造情報(各層の密度，厚さ，表面および各界面のラフネスなど)を非破壊的に与えることができる有望な技術である<sup>1-6)</sup>。

本稿では，X線反射率法の応用面を中心に解説する。もちろん，どんな方法にも長所とともに短所，不十分な点が

あり，そういった点を改良し，高度化する取り組みは欠かせない。そこでX線反射率法の最近の進歩についても触れる。

### 2. X線反射率法とは

物質のX線に対する屈折率は1よりわずかに小さい値をもち，平坦かつ平滑な物質表面に全反射臨界角よりも浅い角度で入射したX線は物質の外部で光学的な全反射を生じる。典型的なX線反射率のデータの例を図1に示す。挿入図に示すように，全反射現象が生じるとき，入射X線に対して鏡面反射X線と屈折X線が生じる。

X線反射率とは，鏡面反射X線強度と入射X線強度の比のことであり，5～8けたに及ぶログスケールで表されることが多い。低角度の全反射域では入射X線の強度とほとんど同じ強度のきわめて強い反射が観測されるが，高角度になると何けたも弱くなる(図1)。X線反射率は，単色X線を用いる場合には視射角の関数として，白色X線を扱う場合には視射角固定のままX線波長(エネルギー)の関数として測定される。それぞれ特色があるが，前者が採用されることが圧倒的に多い。前者の場合，X線反射率のデータの横軸は，視射角( $\theta$ )もしくは散乱角( $2\theta$ )を mrad (1000分の1 radで約0.06度に相当)，もしくは度，秒などの単位で表示される。また散乱ベクトル( $4\pi\sin\theta/\lambda$ ， $\lambda$ はX線の波長)で表現されることもある。

$\theta/2\theta$  走査を行う点で，粉末X線回折の測定と類似して

(独)物質・材料研究機構 放射光解析グループ 〒305-0047 つくば市千現1-2-1.  
e-mail: sakurai@yuhgiri.nims.go.jp

分類番号 2.7, 11.4

Application of X-ray reflectivity technique—Determination of density, thickness and roughness of buried layers and interfaces in multilayered thin films— Kenji SAKURAI. National Institute for Materials Science, Synchrotron X-ray Group (1-2-1 Sengen, Tsukuba, Ibaraki 305-0047)

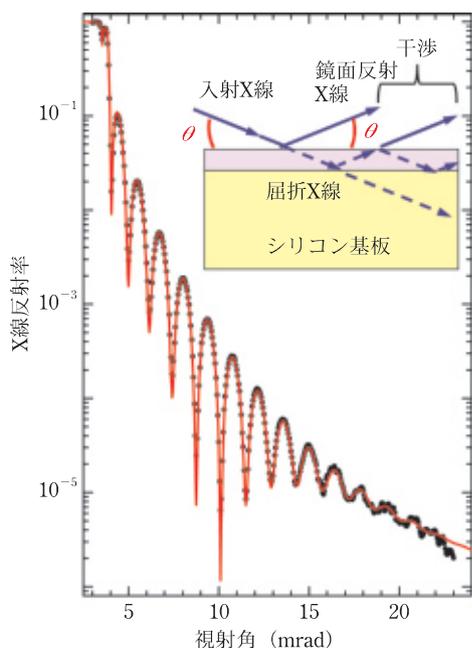


図1 X線反射率データから何がわかるか、シリコン基板上にスパッタ法で堆積させたカーボン薄膜（膜厚 52.6 nm）の実測データ（黒丸）と解析結果（赤の実線）。測定には物質・材料研究機構のX線反射率測定装置（X線エネルギー 8.04 keV）が用いられた。臨界角から薄膜の密度、干渉縞の周期から膜厚、振幅やカーブ全体の減衰の状況から表面・界面ラフネスがわかる。データ解析には、Parratt の多層膜モデル<sup>7)</sup>に Nevot-Croce のラフネスの式<sup>8)</sup>を組み合わせた理論式で計算されるX線反射率とのパラメーターフィッティングが行われることが多い。図では、計算と実験の一致の度合いを示す R 因子は 3.47%。

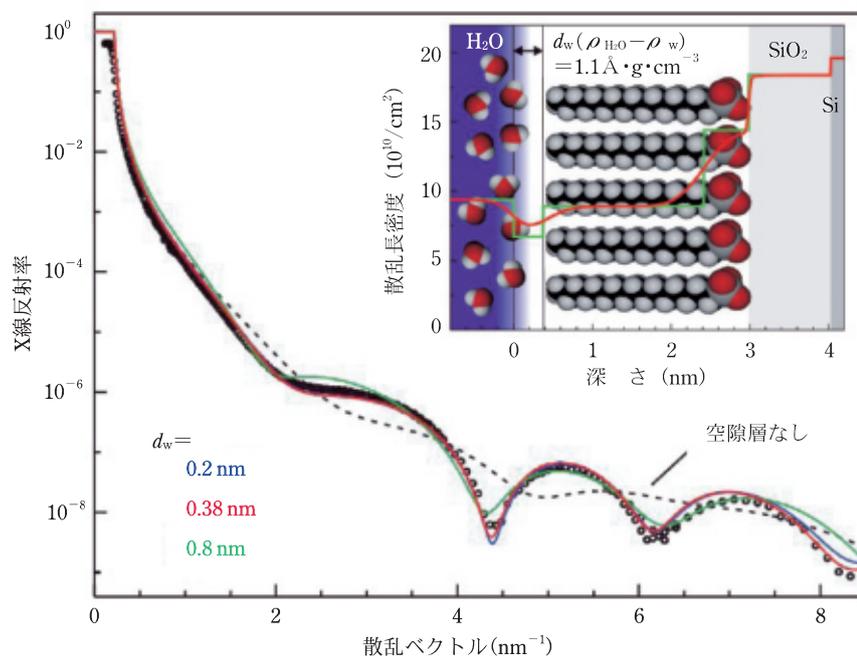


図2 水と油の界面にある空隙層の存在の検証と厚さの決定。水とOTS自己組織化単分子膜の界面のX線反射率のデータ。界面に空隙層の存在を仮定しない限り、この結果を説明することができない。その厚さは0.1~0.6 nmの範囲内と結論づけられた（密度をかけあわせた質量厚さは11 ng/cm<sup>2</sup>）。図中で0.8 nmを仮定した計算結果は実験値とのずれが大きいが、0.2 nmと0.38 nmはよくあう。（文献24の図3および図4（挿入図）を許可を得て転載）

いるが、X線反射率の測定で扱う角度はたかだか0.2~8° (2θ)と、きわめて浅くかつ範囲も狭い。また、X線反射率は、表面、界面が平坦かつ平滑でありさえすれば、どんな構造のどんな物質の薄膜・多層膜でも測定可能であり、結晶構造などには依存しない。

屈折X線は表面よりも内側に侵入する。この侵入深さは視射角が大きくなるにつれ深くなり、やがて薄膜と基板の界面に到達し、そこで反射し、表面で先に反射したX線との間で干渉が生じる。多層膜の場合も、一般の光学での取り扱いはほぼ同様である<sup>7)</sup>。それぞれの界面で多重反射が起き、図1の例もそうであるが、臨界角よりも高角側のX線反射率には、それらを反映した干渉縞が現れる。その個々の周期は各層の厚さに対応し、振幅は表面と各界面でのコントラスト、すなわち、それぞれの層の密度、また表面と各界面のラフネス<sup>8~11)</sup>が寄与する。

そこで、薄膜・多層膜のX線反射率データの解析では、X線の波長、層の総数、各層の化学組成を既知とし、各層の密度、厚さ、表面と各界面のラフネスの一部または全部を求めようとすることが多い。このようなモデルについて理論的に計算されるX線反射率とのフィッティングにより<sup>12~14)</sup>、あるいはフーリエ変換法など<sup>15~23)</sup>も併用しつつ、層構造についてのパラメーターを決定することができる。

### 3. 予期しない層・界面の生成、消失の検出

X線反射率の干渉縞の周波数成分の数は界面の組み合わせの数に対応する。したがって、何らかの反応などにより層・界面が生成または消失し、数が変化すれば、干渉縞が明らかに変わるのですぐわかる。非常に薄い層の場合は、周期が非常に長く緩やかな変化なので、一見してはわかりにくい。対応するモデルについての理論的な反射率カーブを計算すれば明瞭な差異を見いだすことができる。

図2は、疎水性分子表面と水層の間に空隙層が存在することを実験的に証明し、その厚さを求めた例(マックス・プランク金属研究所、Dosch教授グループの研究成果)<sup>24)</sup>を示している。試料は、シリコン基板をオクタデシルトリクロロシラン(略称はOTS、分子式はCH<sub>3</sub>(CH<sub>2</sub>)<sub>17</sub>SiCl<sub>3</sub>)自己組織化単分子膜で修飾したもので、水につけた状態で、水層とOTSの界面にX線を入射させて反射率の測定を行った。疎水性分子の表面には水分子が結合しにくいので界面には空隙層が形成されるといわれながら、確定的な実験事実がなかなかない状況であった<sup>25,26)</sup>。

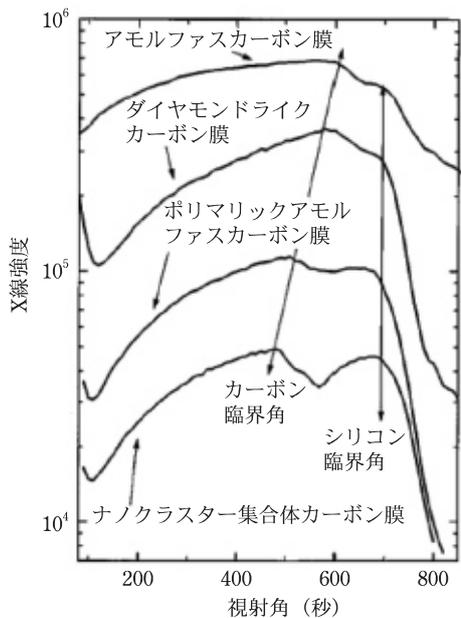


図3 X線反射率法による密度の決定. シリコン基板上的の種々のカーボン薄膜のX線反射率データ. 低角側の全反射領域から反射率が急激に落ちる角度(全反射臨界面角)に注目して密度の違いを議論することができる. (文献30の図2を許可を得て転載)

この実験は、ヨーロッパ放射光施設(ESRF)で行われ、72.5 keVの高エネルギーX線を屈折レンズで集光して用いられた。この結果によれば、空隙層の厚さは、形状厚さ0.1~0.6 nm、質量厚さ(密度と形状厚さの積)で11 ng/cm<sup>2</sup>であった。ほぼ同時期に、同様の目的の研究が、X線反射率法を用いて、オクタデシルトリエトキシシロキサン(octadecyltriethoxysiloxane: OTE)の表面について行われた(イリノイ大学, Robinson 教授グループ)<sup>27</sup>。この場合も空隙層の存在が確認され、形状厚さ0.2~0.4 nm、電子密度が液体の水の40%以下と報告されている。X線反射率法以外にも、偶数次非線形レーザー分光により界面近傍の水分子の構造が研究され<sup>28</sup>、また分子動力学計算により水分子の挙動が議論されている<sup>29</sup>。

#### 4. 密度, 空孔率の決定

X線反射率法は、表面や薄膜の密度を精度よく求めることのできる数少ない技術である。全反射臨界面角は、X線の吸収が小さいとき、物質の密度の平方根に比例する量になる。全反射臨界面角の位置を読み取るだけでも、表面に最も近い層の密度はほぼわかる。さらに反射率データの全体のプロファイルを検討することにより、多層構造の中の任意の層の密度および密度分布を詳しく解析することができる。

図3は、シリコン基板上に作成された種々のカーボン薄膜のX線反射率データの一部について、特に低角側を拡大して示したものである(ケンブリッジ大学, Robertson 教授グループの研究成果)<sup>30</sup>。

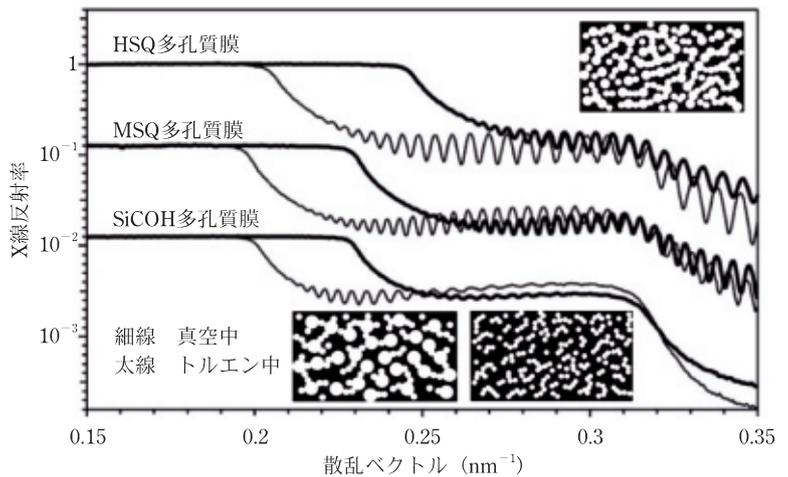


図4 X線反射率法による空孔率の決定. low-*k* 薄膜材料のX線反射率データ. HSQ (Hydrogensilsesquioxane), MSQ (Methylsilsesquioxane) および SiCOH の多孔質膜について、検討された. 真空中で測定した後、トルエンを吸収させて再測定すると、非常に大きな臨界面角のシフトが観測される。これは薄膜の密度が変化したためであり、この関係を利用して空孔率を求めることができる. (文献31の図14を許可を得て転載)

500~650 秒(約 2.4~3.1 mrad) 付近に見られる反射率の降下部がカーボン薄膜の臨界面角、750~800 秒(約 3.6~3.9 mrad) の急降下部はシリコン基板の臨界面角に対応する。①スパッタ法で作成されたアモルファスカーボン膜、②ダイヤモンドライクカーボン膜、③ポリマリックアモルファスカーボン膜、④ナノクラスター集合体カーボン膜の順にカーボンの臨界面角が低角側にシフトしている。密度もこの順になり、それぞれ、1.72, 1.63, 1.3, 0.9~1.4 と求められた(④はクラスターサイズの違いにより密度が異なり、X線反射率カーブも変化する)。

図4は、誘電率が低い層間絶縁膜(low-*k* 膜)の候補と考えられるいくつかの多孔質材料のX線反射率の測定データ(米国 NIST, Wu 博士グループ)<sup>31</sup>を示している。まず真空中で測定し、その後トルエンを吸収させ飽和させた後に、再び測定を行ったものである。まず、どの薄膜についても、トルエンの吸収により、臨界面角が大幅に高角度側に動いていることは一目瞭然であろう。これは、空孔にトルエンの分子が入ることにより、薄膜の密度が大きくなったためである。さらに、臨界面角よりも高角度に見られる干渉縞の周期も多少短くなっている。これはトルエンの吸収により膜が膨潤することに対応する。こうした変化量を計測することにより、空孔率を決定することができる。

#### 5. 膜厚の精密決定

X線反射率法では、干渉縞の周期から多層膜の各層の厚さを決定することができる。この決定精度の優秀さは、かなり以前、実に1970年代前半のナノテクノロジーの黎明期から知られていた。当時、IBMの江崎が人工格子の概念を世界に先駆け提案しており<sup>32</sup>、Bell 研究所の J. R. Arthur

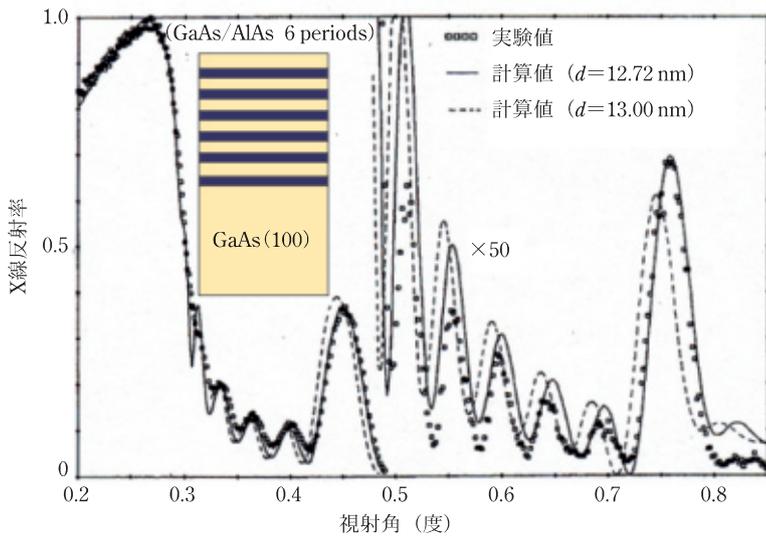


図5 X線反射率法による膜厚の精密決定. GaAs単結晶基板上にGaAsとAlAsを6レイヤーペア成長させた試料のX線反射率データ. それぞれのレイヤーの膜厚をサブナノメートルレベルで決定, 評価することができた. (文献34の図2を許可を得て転載)

と A. Y. Cho により実用化されたばかりの分子線エピタキシー (MBE) 技術<sup>33)</sup> を駆使して量子井戸構造を作製しつつあった. その際, 意図した構造ができているかどうかを確認するため, 原子スケールで膜厚を精密評価する技術を必要としていた. 当時は GaAs/AlAs のレイヤーペアを積層する際, As の厚さが 1 原子層違ったりするのではないかといったことなども重要な関心事だったのである.

図5は, GaAs 基板上に GaAs/AlAs を 6 周期積層した試料の X 線反射率の測定結果 (上述の IBM グループの研究結果)<sup>34)</sup> を示している. GaAs 層と AlAs 層, それぞれの設計値が 7.5 nm, 5 nm のところ, それぞれ 7.6 nm, 5.12 nm の合計 12.72 nm とするモデルが測定結果を最もよく説明できた. このとき, AlAs 層の厚さを 5.4 nm と 0.28 nm 厚くし合計 13 nm としたモデルの計算結果は, 明らかに測定結果とは異なっている. As が余分につく可能性を心配して検討されたものであったが, この結果から, 仮に起きたとしても X 線反射率法により明確に判定できることが明らかになった.

このような非常に高精度の膜厚決定の能力は, 工業製品の品質管理などにも非常に有望であり, 半導体, 磁性体の薄膜・多層膜を中心に広く用いられてきた. 今日では, ベルサイユサミットに基づく新材料と標準に関する国際共同研究 (Versailles Projects on Advanced Materials and Standards: VAMAS) などを舞台にして, X 線反射率法による膜厚決定法の標準化が進められている<sup>35)</sup>.

## 6. 表面・界面ラフネス, モフォロジーの評価

X 線反射率は, 表面・界面ラフネスの影響を受け, ラフネスが無視できる場合よりも減衰して小さな値を取る. こ

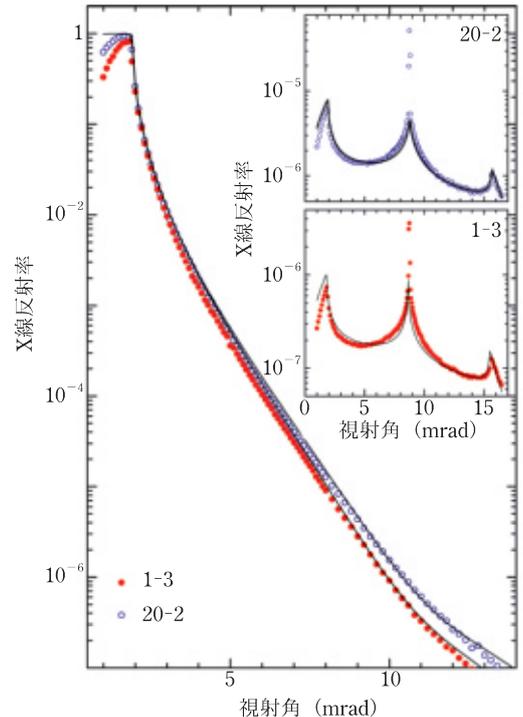


図6 X線反射率法による表面ラフネスの決定. 鏡面研磨仕上げのレベルの異なる二つの合成石英ミラーの X 線反射率と散漫散乱 (ロッキングスキャン) のデータ (X 線エネルギー 16.0 keV). 仕上げレベルの高い 20-2 と低い 1-3 の表面ラフネスはそれぞれ 1.28 nm, 1.36 nm (rms) で, 大きな差ではないが, 仕上げレベルと対応するラフネスの値が得られた. 散漫散乱のデータを併用することにより, ラフネスだけでなく, 相関距離や Hurst パラメーターも求められ, 特に Hurst パラメーターの値がかなり異なることがわかった (20-2, 1-3 それぞれ 0.203, 0.135). 仕上げレベルの低いミラーには, のこぎり状の細かい傷があると考えられる. (文献38の図1を許可を得て転載)

のとき, 反射スポットの周囲に現れる微弱な散漫散乱 (反射小角散乱とも呼ばれる) の強度は逆に強くなり, モフォロジー (形状, 形態) を反映した強度分布を示す. そこで, 表面・界面ラフネスやモフォロジーの検討には, 視射角と脱出角が等しい配置の通常の X 線反射率の測定に加え, 試料もしくは検出器の一方を固定し他方を角度走査するなどの方法によって散漫散乱の測定を行うと有意義なことが多い<sup>3,4,6,36)</sup>.

図6は, 鏡面研磨仕上げのレベルの異なる二つの合成石英ミラーの X 線反射率を測定したものである<sup>37)</sup>. 高角側で少々ではあるが差異が認められ, 仕上げレベルの悪いほうが相対的に大きな傾きで減衰している. 挿入図のロッキングスキャン (検出器を固定し, 試料のみを角度走査する) による散漫散乱の結果には, 中央に見える鏡面反射のピーク以外に, 左右に小さなピーク (発見者の名をとり, Yoneda wing と呼ばれる<sup>38)</sup>) が認められる. このデータでも, その強度はラフネスが大きいほうが強くなるが, 検討の結果, Hurst パラメーター (表面のフラクタル次元に関連する量) が顕著に違っていて, 仕上げレベルによるモフォ

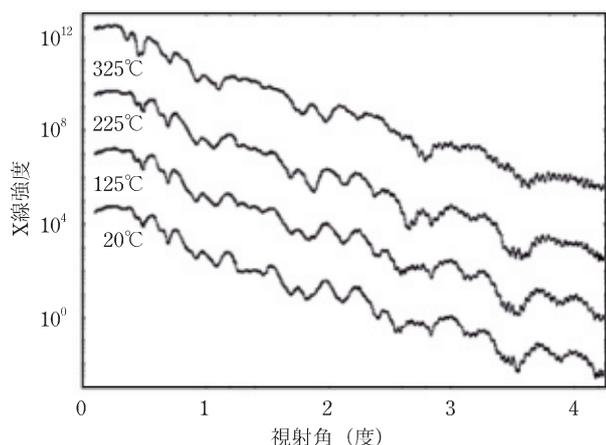


図7 X線反射率法による界面の安定性の検討. Co/MgO系磁気トンネル接合素子のX線反射率データの温度依存性. 高温(225°Cおよび325°C, 特に325°C)では, 2.5~4度の高角側での干渉縞のブロードニングが起きていることがわかる. (文献33の図5を許可を得て転載)

ロジックが異なっていることが明らかになった.

図7は, Co/MgO系磁気トンネル接合素子(膜構造としてはTa(0.3 nm)/Al(0.6 nm)/Co(5.25 nm)/MgO(2 nm)/Co(3.5 nm)/IrMn(11 nm)/Al(12 nm)/Ta(10 nm))の低温でのアニール効果をX線反射率により検討した結果(英国ダラム大学, Tanner教授グループの研究成果)<sup>39)</sup>を示している. 図では, アニールにより, 高角側の干渉縞がぼやけ, 強弱の変化が鮮明ではなくなりつつある様子(ブロードニング)が認められる. このような変化と同じ温度域でトンネル磁気抵抗効果(TMR)の低下が生じることとの関連に関心がもたれるところである. すなわち, 干渉縞のブロードニングはCo/MgO/Coの界面のラフネスの増大によるものなのだろうか.

この研究では, 何種類かの[Co<sub>60</sub>Fe<sub>20</sub>B<sub>20</sub>/MgO]周期多層膜のアニール効果の検討も行われた. 興味深いことに, X線反射率と散漫散乱のいずれも非常によい温度安定性を示し, 図7で見られるような変化は見いだされなかった. 非晶質CoFeBが結晶化する温度域である<sup>40)</sup>にもかかわらずCoFeB/MgO界面でラフネスの変化が生じていないのであれば, さらに安定と思われるCo/MgOでは, なおラフネスの変化は期待しにくい. そのようなことから, 高角側で認められたブロードニングは, ほかの層からの元素の拡散, 具体的にはIrMn層からのMnがCo/MgO界面に入り込んだためではないかと解釈されている. X線反射率法では, 電子密度分布のみを見ているため, 物理的な界面形状(ラフネス)と元素の拡散の区別がつきにくい. 埋もれた界面の解析のためには, 注意深く検討することが必要であり, 時にはこの点を補う実験データを追加することが望ましい.

## 7. X線反射率法の高度化

X線反射率法は, 非常に有用で便利な解析手法であり,

すでに十分に成熟し, 実用段階に達している. 他方, 明らかな欠点や制約も知られている. 通常のX線反射率の測定は約1 cm<sup>2</sup>もしくは, それ以上の広面積にX線を照射することを必要とするし, 測定時間も30分~1時間程度かかる. 試料がその面積のレベルで均一で, 測定結果がよい代表値を与える(「木を見ずとも森を見ればすむ」という前提が成立し, さらに時間的に安定である場合はよいが, そうでない場合への適用に制約があった. もっと微小な試料を測定したい場合, 試料の中にさまざまな構造があり, その特定の部分を測定したい場合, さらに時々刻々変化するものを追跡したい場合などが, 最近が増えており, 困難であっても, こうした解析を可能にする高度化が求められている.

### 7.1 埋もれた層・界面のvisualizationをめざして

通常のX線反射率法では,  $\theta/2\theta$ 走査を行う際に照射面積が大きく変化することから, 微小ビームを用いて, 微小領域分析やサンプルのXYスキャンによるvisualization(可視化)を行うためには,  $\theta/2\theta$ 走査を行うことなくデータ取得できる測定技術が重要である. エネルギー分解能の高い検出器を用いて白色X線の反射スペクトルを測定する方法は, 角度走査を行うことなく等価な情報を比較的迅速に取得できる技術として1970年代から知られていたが<sup>41~46)</sup>, X線源のエネルギー範囲の制約や構成元素の吸収端の影響など, データの品質の問題から応用が限られていた.

しかし, 最近では, SPring-8の100 keV以上の高エネルギー域に及ぶ広い連続スペクトルの白色X線を用いることにより, 大きく状況が改善されつつある<sup>47)</sup>. 長い平行金属板の間隙に高エネルギー白色X線を通すことで, 平行性を犠牲にすることなく17  $\mu\text{m}$ (H)×5.5  $\mu\text{m}$ (V)の微小ビームが形成されるので, それをサンプルに対し固定角度で入射させ, シリコンドリフト検出器で反射X線スペクトルを測定することができる.

図8は, Cr, Cu, Auのラインパターンをガラス基板に作製した試料に対しX線の照射位置を連続的に変えながら, 反射スペクトルのラインスキャンを行った結果である<sup>48)</sup>. 10  $\mu\text{m}$ オーダーの空間分解能と1反射スペクトルを10秒~2分程度で測定できる迅速さのおかげで, これまで困難とされてきたパターンや分布のある不均一な薄膜・多層膜の三次元解析に道が開けつつある. データから特定の深さの電子密度分布を抽出すれば, 各層, 各界面についてのvisualizationが可能になる.

### 7.2 時々刻々変化する埋もれた層・界面のクイック計測をめざして

先の微小領域分析の場合もそうであったが, 精密な $\theta/2\theta$ 走査を必須としない計測技術の開発により, さまざまな自由度が生まれる. その一つがクイック計測である. 先のエネルギー分解能の高い検出器を用いて白色X線の反射スペクトルを測定する方法のほかに, 角度的に大きく分散させた単色X線を用いる方法<sup>49~54)</sup>やそのほかの方法<sup>55)</sup>

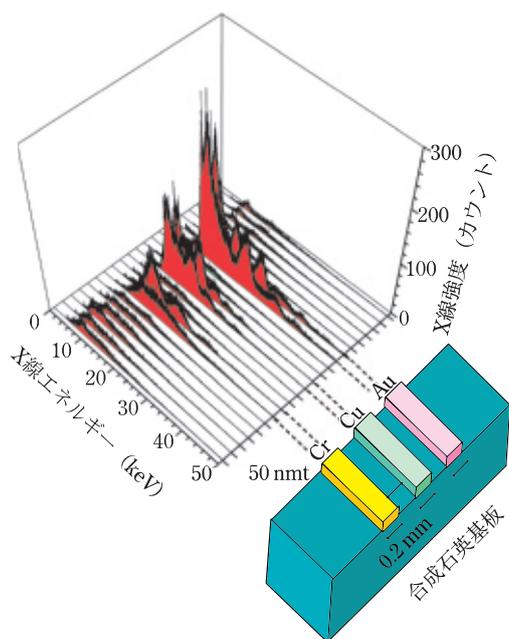


図8 埋もれた層・界面の visualization をめざして<sup>48)</sup>. Cr, Cu, Au のラインパターンをガラス基板上に作製した試料の一次元 X 線反射率スキャン. 高エネルギー白色 X 線の平行・微小ビームを用い, 試料を移動させながら, 各点の X 線反射スペクトルを連続取得した.

も用いられる.

図9は, 温度により疎水性・親水性がスイッチすることで知られる感温性ポリマー薄膜について, この薄膜試料自身も光学系とともに固定したまま X 線反射率を測定した結果を示している<sup>56)</sup>. 全反射臨界面近傍でカーブ全体が温度変化に対応して変化していることがわかる. 挿入図に示すとおり, 同じ温度であっても降温過程と昇温過程は同じではなく, ヒステリシスが認められる. この測定技術は最近さらに進歩を遂げており, 実験室系 X 線源でも表面・界面での分子の凝集挙動などの変化を 0.1 秒程度のスケールで追うことができるようになりつつある.

## 8. む す び

X 線反射率法の応用事例をいくつか紹介した. 目の前にある実際の薄膜, 多層膜について, 自分の手で測定・解析し, 埋もれた層・界面のパラメーターを求めてみたいが, 細部に疑問や不明な点があり, 躊躇<sup>ちゆうちゆう</sup>されている読者もおられるのではないだろうか. 応用物理学会では「X 線反射率法による薄膜・多層膜の解析」講習会を毎年開催しており, データの測定・解析に関する個別の疑問について相談する機会も設けているので, 関心のある方には参加を薦めたい. 講習会のテキストもすでに出版されており<sup>1)</sup>, 参考になるであろう.

また, 本稿では触れることができなかったが, X 線の代わりに中性子を用いる中性子反射率法も非常に有用な技術である. 同位体の識別能 (重水素置換によるラベリング) や磁気モーメントの観測能 (偏極中性子反射率) など, X

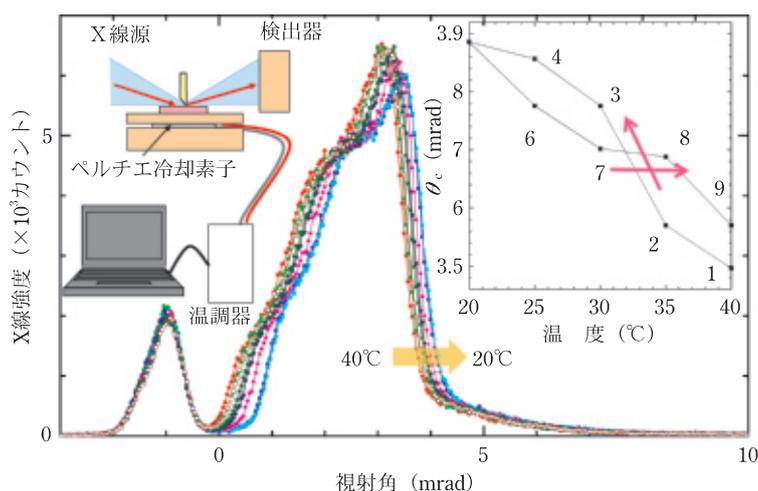


図9 時々刻々変化する埋もれた層・界面のクイック計測をめざして<sup>56)</sup>. 物質・材料研究機構のクイック X 線反射率測定装置 (特許 3903184 号) を用いて取得された感温性ポリマー薄膜の X 線反射率データ. 温度変化に対応し反射率カーブ全体が変化していることがわかる. 挿入図は降温過程, 昇温過程での変化の様子を示したものの.

線にはない特徴を生かした測定が可能である. 散乱能が単純な原子番号 (電子数) の順に従わないことから, 薄膜・多層膜の化学組成によって X 線とは非常に異なる界面のコントラストが得られる場合もあり, 相補利用が望まれる. 軟 X 線なみの波長で, 高エネルギー X 線なみの透過能が得られる点も利用価値が高い. わが国では, 2008 年 5 月に J-PARC でパルス中性子の生成に成功しており, 今後, 本格的な利用研究の進展が期待されている.

## 文 献

- 1) 桜井健次編: X 線反射率法入門 (講談社サイエンティフィック, 2009).
- 2) K. Stoev and K. Sakurai: Spectrochim. Acta B **54**, 41 (1999).
- 3) M. Tolan: X-ray Scattering from Soft-Matter Thin Films (Springer, 1999).
- 4) J. Daillant and A. Gibaud Eds: X-ray and Neutron Reflectivity: Principles and Applications (Springer, 1999).
- 5) J. Als-Nielsen and D. McMorrow: Elements of Modern X-ray Physics (John Wiley & Sons, 2000).
- 6) U. Pietsch, V. Holy and T. Baumbach: High-Resolution X-ray Scattering: From Thin Films to Lateral Nanostructures (Springer, 2004).
- 7) L. G. Parratt: Phys. Rev. **95**, 359 (1954).
- 8) P. Croce and L. Nevot: J. Appl. Cryst. **7**, 125 (1974).
- 9) L. Nevot and P. Croce: Rev. Phys. Appl. **15**, 761 (1980).
- 10) A. Segmuller: Thin Solid Films **18**, 287 (1973).
- 11) A. Segmuller: AIP. Conf. Proc. **53**, 78 (1979).
- 12) T. C. Huang and W. Parrish: Adv. in X-Ray Anal. **35**, 137 (1992).
- 13) A. Ulyanekov and S. Sobolewski: J. Phys. D. A **38**, 235 (2005).
- 14) J. Tiilikainen, J.-M. Tilli, V. Bosund, M. Mattila, T. Hakkarainen, V.-M. Airaksinen and H. Lipsanen: J. Phys. D. **40**, 215 (2007).
- 15) K. Sakurai and A. Iida: The Pacific International Congress on X-ray Analytical Methods, Hawaii, 1991.
- 16) K. Sakurai and A. Iida: Jpn. J. Appl. Phys. **31**, L113 (1992).

- 17) K. Sakurai and A. Iida : Adv. in X-Ray Anal. **35**, 813 (1992).
- 18) F. Bridou and B. Pardo : J. Phys. III. **4**, 1523 (France, 1994).
- 19) F. Bridou and B. Pardo : J. X-Ray Sci. Technol. **4**, 200 (1994).
- 20) F. Bridou and B. Pardo : J. Phys. III. **6**, C4 367 (France, 1996).
- 21) F. Bridou, J. Gautier, F. Delmotte, M.-F. Ravet, O. Durand and M. Modreanu : Appl. Surf. Sci. **253**, 12 (2006).
- 22) I. R. Prudnikov, R. J. Matyl, and R. D. Deslattes : J. Appl. Phys. **90**, 3338 (2001).
- 23) O. Starykov and K. Sakurai : Appl. Surf. Sci. **244**, 235 (2005).
- 24) M. Mezger, H. Reichert, S. Schroder, J. Okasinski, H. Schroder, H. Dosch, D. Palms, J. Ralston, and V. Honkimaki : Proc. Natl Acad. Sci. USA **103**, 18401 (2006).
- 25) F. H. Stillinger : J. Solut. Chem. **2**, 141 (1973).
- 26) D. Chandler : Nature **445**, 831 (2007).
- 27) A. Poynor, L. Hong, I. K. Robinson, S. Granick, Z. Zhang and P. A. Fenter : Phys. Rev. Lett. **97**, 266101 (2006).
- 28) S. Yamaguchi and T. Tahara : Angew. Chem. Int. Ed. **46**, 7609 (2007).
- 29) N. Giovambattista, P. G. Debenedetti, and P. J. RosskyGiovambattista : J. Phys. Chem. **C 111**, 1323 (2007).
- 30) A. C. Ferrari, A. Libassi, B. K. Tanner, V. Stolojan, J. Yuan, L. M. Brown, S. E. Rodil, B. Kleinsorge, and J. Robertson : Phys. Rev. **B 62**, 11089 (2000).
- 31) C. L. Soles, H.-J. Lee, E. K. Lin and W. Wu : NIST Special Publication 960-13 (2004).
- 32) L. Esaki and R. Tsu : IBM J. Res. Deve. **14**, 61 (1970).
- 33) J. R. Arthur Jr.: J. Appl. Phys. **39**, 4032 (1968).
- 34) L. L. Chang, A. Segmuller, and L. Esaki : Appl. Phys. Lett. **28**, 39 (1976).
- 35) P. Colombi, D. K. Agnihotri, V. E. Asadchikov, E. Bontempi, D. K. Bowen, C. H. Chang, L. E. Depero, M. Farnworth, T. Fujimoto, A. Gibaud, M. Jergel, M. Krumrey, T. A. Lafford, A. Lamperti, T. Ma, R. J. Matyi, M. Meduna, S. Milita, K. Sakurai, L. Shabel'nikov, A. Ulyanekov, A. Van der Lee and C. Wiemer : J. Appl. Cryst. **41**, 143 (2008).
- 36) S. K. Sinha, E. B. Sirota, S. Garof, and H. B. Stanley : Phys. Rev. **B 38**, 2297 (1988).
- 37) M. Mizusawa, K. Stoev, and K. Sakurai : Photon Factory Activity Report 2002 #20B, 64 (2003).
- 38) Y. Yoneda : Phys. Rev. **131**, 2010 (1963).
- 39) A. Lamperti, A. T. G. Pym, D. S. Eastwood, S. Cardoso, P. Wisniowski, P. P. Freitas, G. I. R. Anderson, C. H. Marrows, and B. K. Tanner : Phys. Stat. Sol. (a) **204**, 2778 (2007).
- 40) C. Park, J.-G. Zhu, M. T. Moneck, Y. Peng, and D. E. Laughlin : J. Appl. Phys. **99**, 08A901 (2006).
- 41) Y. Nakano, T. Fukamachi, K. Hayakawa : Jpn. J. Appl. Phys. **17-2**, 329 (1978).
- 42) D. H. Bilderback and S. Hubbard : Nucl. Instrum. & Methods **195**, 85 (1982).
- 43) D. H. Bilderback and S. Hubbard : Nucl. Instrum. & Methods **195**, 91 (1982).
- 44) M. Bhattacharya, M. Mukherjee, M. K. Sanyala, Th. Geue, J. Grenzer, and U. Pietsch : J. Appl. Phys. **94**, 2882 (1993).
- 45) W. E. Wallace and W. L. Wu : Appl. Phys. Lett. **67**, 1203 (1995).
- 46) T. Horiuchi, K. Ishida, K. Hayashi and K. Matsushige : Adv. in X-Ray Anal. **39**, 171 (1995).
- 47) K. Sakurai, M. Mizusawa, M. Ishii, S. Kobayashi, and Y. Imai : J. Phys. Conf. Series **83**, 012001 (2007).
- 48) K. Sakurai, M. Mizusawa and Y. Imai : 投稿準備中
- 49) A. Naudon, J. Chihab, P. Goudeau and J. Mimault : J. Appl. Cryst. **22**, 460 (1989).
- 50) A. Naudon : Analisis **18**, I22 (France, 1992).
- 51) J. Chihab and A. Naudon : J. de Phys. III. **2**, 2291 (France, 1992).
- 52) U. Niggemeier, K. Lischka, W. M. Plotz and V. Holy : J. Appl. Cryst. **30**, 905 (1997).
- 53) L. N. Koppel : US patent No. 5619548 (1997).
- 54) 桜井健次, 水沢まり : 特許 3903184 号.
- 55) T. Matsushita, Y. Niwa, Y. Inada, M. Nomura, M. Ishii, K. Sakurai and E. Arakawa : Appl. Phys. Lett. **92**, 024103 (2008).
- 56) K. Sakurai and M. Mizusawa : 投稿準備中  
(2008年11月10日 受理)



きくらい けんじ  
桜井 健次

1983年東京大学工学部卒, 88年同大学院博士課程修了, 同年科学技術庁金属材料技術研究所入所. 現在, (独)物質・材料研究機構量子ビームセンター放射光解析グループリーダー. 03年よりチェコ共和国チャールズ大学数学物理学部特任教授, 04年より筑波大学大学院数理物質科学研究科物質・材料工学専攻教授をそれぞれ兼任. 主な専門はX線スペクトロメトリーおよびイメージングによる新しい計測・分析. 応用物理学会, 埋もれた界面のX線・中性子解析研究会代表. 最近はJ-PARCのパルス中性子による埋もれた界面のvisualization技術に関心を持っている.