

新博士紹介

1. 氏名 志村考功(現:大阪大学工学部精密工学科)
2. 論文提出大学 名古屋大学
3. 学位の種類 博士(工学)
4. 取得年月 1993年8月
5. 題目 Fundamental aspects of X-ray scattering from crystal surfaces and interfaces
6. アブストラクト

平坦な表面を持つ結晶からのX線散乱強度を測定すると、逆空間において、ブラッグ点から結晶表面に垂直な方向に延びる棒状の散乱が観測される。この散乱はX線CTR(Crystal Truncation Rod)散乱と呼ばれており、結晶表面が存在することによる外形効果として理解することができる。その強度分布は結晶表面の形状に依存しているので、この強度分布を調べることで結晶表面の情報(荒れや格子緩和など)を原子レベルで得ることができる。近年、X線回折法による結晶表面の研究は益々盛んになってきているが、その多くがこのCTR散乱を利用している。

運動学的回折理論において、通常、散乱振幅 $A(\mathbf{K})$ は、

$$A(\mathbf{K}) = \sum_{n_x} \sum_{n_y} \sum_{n_z} F(\mathbf{K}) e^{iK_x n_x a_x} e^{iK_y n_y a_y} e^{iK_z n_z a_z}$$

のように表される。ここで、 $\mathbf{K}(K_x, K_y, K_z)$ は散乱ベクトル、 a_x^* , a_y^* , a_z^* は逆格子ベクトル、 $F(\mathbf{K})$ は構造因子である。今、 $z=0$ にある理想的に平らな表面を考え z 軸を表面法線方向にとると、 $A(\mathbf{K})$ は、次のように書き直すことができる。

$$A(\mathbf{K}) = \sum_{n_x} \sum_{n_y} \Phi_{(n_x, n_y)}(\mathbf{K}) e^{iK_x n_x a_x} e^{iK_y n_y a_y}$$

ただし、

$$\begin{aligned} \Phi_{(n_x, n_y)}(\mathbf{K}) &= \sum_{n_z=0}^{N_z^1(n_x, n_y)-1} F(\mathbf{K}) e^{iK_z n_z a_z} \\ &= F(\mathbf{K}) \cdot \left\{ \frac{1}{1-e^{iK_z a_z}} - \frac{e^{iK_z N_z^1(n_x, n_y)}}{1-e^{iK_z a_z}} \right\} \quad (1) \end{aligned}$$

とする。ここで、 $N_z^1(n_x, n_y)-1$ は、結晶表面にお

ける (n_x, n_y) の位置での結晶表面と反対側の端の位置を表している。CTR散乱の強度式は、この $\Phi_{(n_x, n_y)}(\mathbf{K})$ を使って、

$$I_{CTR}(\mathbf{K}) = I_e \cdot \langle \Phi(\mathbf{K}) \rangle^2$$

$$\times \sum_{n_x=-\infty}^{\infty} \sum_{n_y=-\infty}^{\infty} a_x^* a_y^* N_x N_y \delta(K_x - n_x a_x^*) \delta(K_y - n_y a_y^*)$$

と表すことができる¹⁾。 I_e は、一つの電子からの散乱強度を、 $\langle \dots \rangle$ は、 (n_x, n_y) について平均をとったことを示している。

ここで、問題となるのは、 $\langle \Phi(\mathbf{K}) \rangle^2$ である。Robinson²⁾ は、この和を、ラウエ関数の分子を平均することによって次のように取り扱った。

$$\begin{aligned} \left| \sum_{n_z=0}^{N_z^1-1} e^{iK_z n_z a_z} \right|^2 &= \frac{\sin^2(\frac{1}{2} K_z N_z^1 a_z)}{\sin^2(\frac{1}{2} K_z a_z)} \\ &\rightarrow \frac{1}{2 \sin^2(\frac{1}{2} K_z a_z)} \\ &\quad \text{as } N_z^1 \rightarrow \infty \end{aligned}$$

つまり、

$$\langle \Phi(\mathbf{K}) \rangle^2 = |F(\mathbf{K})|^2 \cdot \frac{1}{2 \sin^2(\frac{1}{2} K_z a_z)} \quad (2)$$

とした。

これに対し、Vlieg³⁾等は吸収の効果を考慮することにより、

$$\begin{aligned} \Phi_{(n_x, n_y)}(\mathbf{K}) &= F(\mathbf{K}) \cdot \sum_{n_z=0}^{N_z^1(n_x, n_y)-1} e^{iK_z n_z a_z} e^{-\mu n_z a_z} \\ &\rightarrow F(\mathbf{K}) \cdot \frac{1}{1 - e^{iK_z a_z} e^{-\mu a_z}} \\ &\quad \text{as } N_z^1(n_x, n_y) \rightarrow \infty \end{aligned}$$

つまり、

$$\langle \Phi(\mathbf{K}) \rangle^2 = |F(\mathbf{K})|^2 \cdot \frac{1}{4 \sin^2(\frac{1}{2} K_z a_z)} \quad (3)$$

とした。ただし μ は吸収係数であり、和を取った後、 $\exp(-\mu a_z) \sim 1$ と近似してある。(2)式は、(3)式の2倍になっていることが分かる。CTR散乱の強度を相対強度測定した場合、(2)式と(3)式の違いは全く問題にならない。そのため、この違いについて今まであまり論議されることはなか

った。しかし、X線回折学上、重要な問題であるといえる。本研究では、CTR散乱を絶対強度（入射X線強度に対する比）で測定することにより、この2つの取扱いの妥当性を検討した。

絶対強度測定は、イメージングプレートを用いてCTR散乱とTDS(Thermal Diffuse Scattering)を同時測定することにより行った⁴⁾。TDSは原子の熱振動に起因する散乱であり、弾性定数がわかっている場合には絶対強度を求めることができる。つまり、TDSの散乱強度からこのとき入射したX線の強度を見積もることができ、CTR散乱の強度を絶対値化できる。図1にSi(111)ウエハの111ブラッグ点周りのCTR散乱の測定結果を示す。○が測定値を表している。また、点線がRobinson、実線がVlieg等による取扱いに対する計算結果を示している。計算はどちらの場合も理想的に平らな結晶に対する散乱強度である。したがって、ブラッグ点から遠く離れたところで、両方の計算値とも測定値と大きくくずれているのは、実際の試料の表面が理想的な表面とは違っているためであ

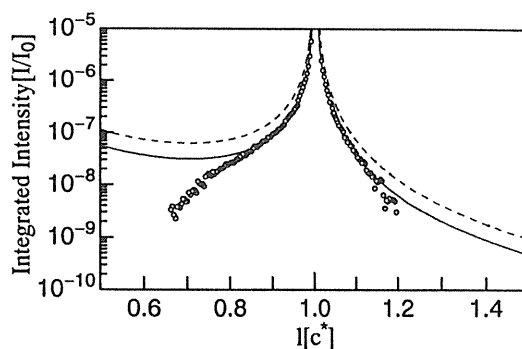


図1 Si(111)ウエハの111ブラッグ点周りのCTR散乱の絶対強度分布

ると考えられる。ブラッグ点近傍で計算値と実測値を比較すると、Vlieg等の取扱いに対する計算値が実測値と見事に一致していることが分かる。

References

- 1) J. Harada: Acta Cryst. **A48**, 764 (1992).
- 2) I. K. Robinson: Phys. Rev. **B33**, 3830 (1986).
- 3) E. Vlieg et al.: Surface Sci. **210**, 301 (1989).
- 4) T. Shimura and J. Harada: J. Appl. Cryst. **26**, 151 (1993).

(受付番号 94012)

新博士紹介

1. 氏名 寺澤昇久 (現: 京都工芸繊維大学
工芸学部 物質工学科)
2. 論文提出大学 東京工業大学
3. 学位の種類 博士 (理学)
4. 取得年月 1993年9月
5. 題名 放射光パルス特性を用いた
励起水素原子の衝突脱励起過程に関する研究

6. アブストラクト

励起水素原子の水素分子による衝突脱励起過程は、原子・分子衝突過程の最も単純なものであり、化学反応における最も重要な素過程の一つとして興味深い。励起水素原子の主量子数が互いに等し

く軌道角運動量子数が互いに異なる状態は、エネルギー的にほとんど縮退している。また、実験室で容易に生成することができる励起水素原子は、H(2s)原子を除くとその自然寿命がきわめて短い(約ナノ秒)。したがってH(2s)原子を除くと特定の励起状態にある水素原子のビームを生成することはきわめて困難であり、励起水素原子の衝突過程に関する研究例はきわめて限られてくる。しかし、最も簡単な原子であって、しかもわずかなエネルギー差で縮退している励起水素原子の衝突脱励起過程について、その原子の電子状態に依存した断面積を調べることは反応物理化学の基本的課題として重要である。そこで、本研究では放射光のパルス特性を利用して、このような衝突脱