Angle Resolved Light Scattering に関するまとめ

中野武雄

1996-12-12

概 要

この文書は H. -N. Yang, G. -C. Wang and T. -M. Lu の著書 “Diffraction from rough surfaces and Dynamic Growth Fronts” の 2–3 章の議論を抜粋してまとめたものである。原文では連続表面と結晶表面とを並行して記述しているが、ここでは連続表面を中心にまとめた。

1　表面散乱の一般論

1.1　表面散乱における構造因子

空間に分布した媒体によって波が散乱されるとき、散乱ベクトル $\boldsymbol{k}$ に対応する散乱振幅 $A(\boldsymbol{k})$ は

$$A(\boldsymbol{k}) = \int D(\boldsymbol{x}) e^{-i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{x}} d^3x \tag{1}$$

で与えられる。$D(\boldsymbol{x})$ は散乱密度と呼ばれる量で、 $\boldsymbol{x}$ における散乱のされやすさに対応する。

マクロなスケールで見たときに xy 平面に平行であるような表面を考え、そのミクロな z 座標が

$$z = z(\boldsymbol{\rho}) \tag{2}$$

で与えられるものとする。 $\boldsymbol{\rho}$ は xy 平面上の 2 次元座標である。このとき入射波の散乱が表面でしか起こらないとすると、散乱密度 D は

$$D(\boldsymbol{\rho}, z') = \delta\left(z' - z(\boldsymbol{\rho})\right) \tag{3}$$

と表すことができる。すると式 1 は

$$\begin{aligned} A(\boldsymbol{k}) &= \int D(\boldsymbol{\rho}, z') e^{-ik_\perp z'} e^{-i\boldsymbol{k}_\parallel\cdot\boldsymbol{\rho}} dz' d^2\rho \\ &= \int e^{-ik_\perp z(\boldsymbol{\rho})} e^{-i\boldsymbol{k}_\parallel\cdot\boldsymbol{\rho}} d^2\rho \end{aligned} \tag{4}$$

となる。$k_\perp$ は $\boldsymbol{k}$ の z 方向成分、$\boldsymbol{k}_\parallel$ は xy 平面に平行な成分（二次元ベクトル）である。

散乱の構造因子 $S(\boldsymbol{k})$ は、散乱振幅の絶対値の自乗として定義されており、

$$\begin{aligned} S(\boldsymbol{k}) &= A^*(\boldsymbol{k}) A(\boldsymbol{k}) \\ &= \int d^2\rho'\, e^{ik_\perp z(\boldsymbol{\rho}')} e^{i\boldsymbol{k}_\parallel \boldsymbol{\rho}'} \int d^2\rho\, e^{-ik_\perp z(\boldsymbol{\rho})} e^{-i\boldsymbol{k}_\parallel\cdot\boldsymbol{\rho}} \\ &= \int\int d^2\rho'\, d^2\rho\, e^{ik_\perp [z(\boldsymbol{\rho}') - z(\boldsymbol{\rho})]} e^{i\boldsymbol{k}_\parallel\cdot(\boldsymbol{\rho}' - \boldsymbol{\rho})} \end{aligned} \tag{5}$$

となる。ここで $\boldsymbol{r} = \boldsymbol{\rho}' - \boldsymbol{\rho}$ として積分を書き換えると、

$$S(\boldsymbol{k}) = \int d^2 r \left(\int d^2 \rho \, e^{ik_\perp [z(\boldsymbol{r}+\boldsymbol{\rho}) - z(\boldsymbol{\rho})]} \right) e^{i\boldsymbol{k}_\parallel \cdot \boldsymbol{r}} \tag{6}$$

を得る。

式 6 の内側の積分項を積分領域の面積で割ったものを位相相関関数（原書では Height difference function）$C(k_\perp, \boldsymbol{r})$ と定義する。すなわち

$$\begin{aligned} \frac{1}{A} \int d^2 \rho \, e^{ik_\perp [z(\boldsymbol{r}+\boldsymbol{\rho}) - z(\boldsymbol{\rho})]} &= \left\langle e^{ik_\perp [z(\boldsymbol{r}+\boldsymbol{\rho}) - z(\boldsymbol{\rho})]} \right\rangle \\ &\equiv C(k_\perp, \boldsymbol{r}) \end{aligned} \tag{7}$$

である。ここで $A \equiv \int d^2 \rho$ である。定数係数 A を無視して最終的な散乱構造因子を

$$S(\boldsymbol{k}) = \int d^2 r \, C(k_\perp, \boldsymbol{r}) e^{i\boldsymbol{k}_\parallel \cdot \boldsymbol{r}} \tag{8}$$

と定め、以降ではこれを用いることにする。

1.2 Gauss 表面における位相相関関数

位相相関関数を計算するには、xy 平面上の距離 $\boldsymbol{r}$ だけ離れた 2 点間における高さの違い $\Delta z = z(\boldsymbol{r}) - z(\boldsymbol{0})$ がどのような分布関数になっているかを知る必要がある。今この関数を $g(\Delta z, \boldsymbol{r})$ とすると、位相相関関数は

$$C(k_\perp, \boldsymbol{r}) = \left\langle e^{ik_\perp [z(\boldsymbol{r}+\boldsymbol{\rho}) - z(\boldsymbol{\rho})]} \right\rangle = \int d(\Delta z) g(\Delta z, \boldsymbol{r}) e^{ik_\perp \Delta z} \tag{9}$$

と書ける。これは式 7 での積分を $\int d^2 \rho$ から $\int d(\Delta z) g(\Delta z, \boldsymbol{r})$ に変換したものと考えることができる。

ちなみに変位 Δz の自乗平均は高さ高さ相関関数（Height-height correlation function）と呼ばれるが、これはこの $g(\Delta, \boldsymbol{r})$ を用いると

$$H(\boldsymbol{r}) \equiv \int d(\Delta z) \, (\Delta z)^2 \, g(\Delta z, \boldsymbol{r}) = \left\langle [z(\boldsymbol{r}) - z(\boldsymbol{0})]^2 \right\rangle \tag{10}$$

のようにで定義できる。

以降の計算では、この $g(\Delta z, \boldsymbol{r})$ が Gauss 分布

$$g(\Delta z, \boldsymbol{r}) = \frac{1}{\sigma \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(\Delta z)^2}{2\sigma^2}} \tag{11}$$

をしているものとする（重要な仮定なので良く認識しておく）。またこのとき一般に分散 σ は $\boldsymbol{r}$ の関数であることに注意。

このときの位相相関関数は

$$C(k_\perp, \boldsymbol{r}) = \int_{-\infty}^{\infty} d(\Delta z) \, \frac{1}{\sigma \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(\Delta z)^2}{2\sigma^2}} e^{ik_\perp \Delta z} = e^{-\frac{1}{2}(k_\perp \sigma)^2} \tag{12}$$

となる。

また高さ高さ相関関数は

$$H(\boldsymbol{r}) = \int_{-\infty}^{\infty} d(\Delta z) \, (\Delta z)^2 \frac{1}{\sigma \sqrt{2\pi}} e^{\frac{(\Delta z)^2}{2\sigma^2}} = \sigma^2 \tag{13}$$

となる。式 12 と 式 13 をまとめると、

$$C(k_\perp, \boldsymbol{r}) = e^{-\frac{1}{2}(k_\perp)^2 H(\boldsymbol{r})} \tag{14}$$

という関係が与えられることになる。

2　自己アフィン表面における構造因子

2.1　自己アフィン表面

一般に『表面ラフネス』という場合には、高さの自乗平均（Root Mean Square: RMS） w が用いられる場合が多い。これは

$$w^2 = \left\langle [z(\boldsymbol{r}) - \langle z \rangle]^2 \right\rangle \tag{15}$$

と定義されている。これと先に述べた高さ高さ相関関数との関係は、

$$\begin{aligned} H(\boldsymbol{r}) &= \left\langle [z(\boldsymbol{r}) - z(\boldsymbol{0})]^2 \right\rangle \\ &= \left\langle \{[z(\boldsymbol{r}) - \langle z \rangle] - [z(\boldsymbol{0}) - \langle z \rangle]\}^2 \right\rangle \\ &= \left\langle [z(\boldsymbol{r}) - \langle z \rangle]^2 \right\rangle + \left\langle [z(\boldsymbol{0}) - \langle z \rangle]^2 \right\rangle - 2 \langle [z(\boldsymbol{r}) - \langle z \rangle][z(\boldsymbol{0}) - \langle z \rangle] \rangle \\ &\sim 2w^2 (|\boldsymbol{r}| \to \infty) \end{aligned} \tag{16}$$

となる。3 番目の式の最終項は、$\boldsymbol{r}$ が充分大きくなって $z(\boldsymbol{r})$ と $z(\boldsymbol{0})$ に相関がなくなれば 0 になる。

一方 $\boldsymbol{r} \to 0$ となるに従い $H(\boldsymbol{r}) = \langle [z(\boldsymbol{r}) - z(\boldsymbol{0})]^2 \rangle \to 0$ となるはずだから、$H(\boldsymbol{r})$ の一般的な振る舞いは

$$H(\boldsymbol{r}) \sim \begin{cases} r^{2\alpha} & (r \ll \xi) \\ 2w^2 & (r \gg \xi) \end{cases} \tag{17}$$

と仮定する。この時 ξ は横相関長（lateral correlation length）と呼ばれる。

もしこのような $H(\boldsymbol{r})$ を

$$H(\boldsymbol{r}) = 2w^2 f\left(\frac{r}{\xi}\right) \tag{18}$$

と書くと、関数 $f(X)$ は $X \ll 1$ で $f(X) = X^{2\alpha}$、$X \gg 1$ で $f(X) = 1$ となる。このような関数としては、例えば

$$f(X) = 1 - e^{-X^{2\alpha}} \tag{19}$$

などがある。このとき $r \ll \xi$ における $H(\boldsymbol{r})$ の漸近的な関数形は

$$H(\boldsymbol{r}) = 2\left(\frac{r}{\eta}\right)^{2\alpha} \tag{20}$$

と書けることになる。ここで $\eta = \xi w^{-\frac{1}{\alpha}}$ は散乱において重要な量になることが後に示される。

2.2　自己アフィン表面の散乱因子

散乱因子と位相相関関数の関係を再掲する。

$$S(\boldsymbol{k}) = \int d^2 r\, C(k_\perp, \boldsymbol{r}) e^{i\boldsymbol{k}_\parallel \cdot \boldsymbol{r}}$$

また、相対変位 $z(\boldsymbol{r}) - z(\boldsymbol{0})$ が Gauss 分布をしている表面での位相相関関数 $C(k_\perp, \boldsymbol{r})$ は

$$C(k_\perp, \boldsymbol{r}) = e^{-\frac{1}{2}(k_\perp)^2 H(\boldsymbol{r})}$$

であった。

自己アフィンフラクタル表面においては $r\to\infty$ において $H(\boldsymbol{r})\to 2w^2$: const であるから、この時の位相相関関数 $C(k_\perp,\boldsymbol{r}\to\infty)\equiv C_\infty(k_\perp)$ は、$\boldsymbol{r}$ によらない $k_\perp$ だけの関数と考えることができる。この $C_\infty(k_\perp)$ を用いて位相相関関数を

$$C(k_\perp,\boldsymbol{r})=C_\infty(k_\perp)+\Delta C(k_\perp,\boldsymbol{r}) \tag{21}$$

のように分けて書くことにする。$\Delta C(k_\perp,\boldsymbol{r})$ は言うまでもなく

$$\Delta C(k_\perp,\boldsymbol{r})=C(k_\perp,\boldsymbol{r})-C_\infty(k_\perp) \tag{22}$$

で与えられる関数である。

この関係を用いると散乱因子は

$$S(\boldsymbol{k})=\int d^2r\,C_\infty(k_\perp)e^{i\boldsymbol{k}_\parallel\cdot\boldsymbol{r}}+\int d^2\,\Delta C(k_\perp,\boldsymbol{r})e^{i\boldsymbol{k}_\parallel\cdot\boldsymbol{r}} \tag{23}$$

となる。第一項では C_∞ が積分の前に出て、残りは delta 関数となる（ホワイトノイズの Fourier 変換)。

$$\int d^2r\,C_\infty(k_\perp)e^{i\boldsymbol{k}_\parallel\cdot\boldsymbol{r}}=(2\pi)^2C_\infty k_\perp\delta(\boldsymbol{k}_\parallel)=(2\pi)^2e^{-(k_\perp w)^2}\delta(\boldsymbol{k}_\parallel)$$

実際には測定系の窓関数（通常 Gauss 関数）が convolution された形で見えるので、この δ 成分は Gauss 関数として観測される。

また δ 成分は $k_\perp w$ の増加と共に急激に減少する関数であることに注意する。形式的には X 線回折でいうところの Debye-Waller 因子と同じになる。熱振動の振幅の自乗平均が自乗平均ラフネスに対応する。

一方第二項を $S_{\mathrm{diff}}(\boldsymbol{k}_\parallel,k_\perp)$ と定義する。すなわち

$$S_{\mathrm{diff}}(\boldsymbol{k}_\parallel,k_\perp)=\int d^2r\,\Delta C(k_\perp,\boldsymbol{r})e^{i\boldsymbol{k}_\parallel\cdot\boldsymbol{r}}$$

である。これがバックグラウンドの拡散散乱成分（Diffuse 成分）を与える。

以上まとめると自己アフィンフラクタル表面における散乱因子は

$$S(\boldsymbol{r})=(2\pi)^2e^{-(k_\perp w)^2}\delta(\boldsymbol{k}_\parallel)+S_{\mathrm{diff}}(\boldsymbol{k}_\parallel,k_\perp) \tag{24}$$

と書けることになる。

2.3 Diffuse 成分の形

位相相関関数のうち自己アフィンな変化をする成分 $\Delta C(k_\perp,\boldsymbol{r})$ の形をもう一度書くと、

$$\Delta C(k_\perp,\boldsymbol{r})=e^{-\frac{1}{2}\Omega H(\boldsymbol{r})/w^2}-e^{-\Omega} \tag{25}$$

となっている。ただし $\Omega\equiv(k_\perp w)^2$ と置いた。

式 18 で定義されたスケーリング関数を用いると、

$$\frac{H(\boldsymbol{r})}{2w^2}=f(r/\xi) \tag{26}$$

であるから、結局散乱成分は

$$
\begin{aligned}
S_{\rm diff}(\boldsymbol{k}_\parallel, kv) &= \int d^2r\left[e^{-\Omega f(r/\xi)} - e^{\Omega}\right]e^{i\boldsymbol{k}_\parallel\cdot\boldsymbol{r}} \\
&= e^{-\Omega}\int d^2r\left\{e^{\Omega[1-f(r/\xi)]}-1\right\}e^{i\boldsymbol{k}_\parallel\cdot\boldsymbol{r}} \qquad (27)
\end{aligned}
$$

と書ける。ここで中括弧の中身 $P(\boldsymbol{r}) = P(r) \equiv e^{\Omega[1-f(r/\xi)]}-1$ が $\boldsymbol{r}$ の方向によらず、絶対値のみの関数であるとする（すなわち方位角に対してラフネスが等方的）。すると式 27 の積分は

$$
\begin{aligned}
\int d^2r\, P(r)e^{i\boldsymbol{k}_\parallel\cdot\boldsymbol{r}} &= \int_0^\infty P(r)\,rdr\int_0^{2\pi}d\theta e^{ik_\parallel r\cos\theta} \\
&= 2\pi\int_0^\infty rdr\,P(r)J_0(k_\parallel r) \\
&= 2\pi\int_0^\infty\left\{e^{\Omega[1-f(r/\xi)]}-1\right\}J_0(k_\parallel r) \qquad (28) \\
& \qquad (29)
\end{aligned}
$$

となる。ここで J_0 は 0 次の Bessel 関数である。定義は次の式。

$$
J_0(k_\parallel r) = \frac{1}{2\pi}\int_0^\infty d\theta\, e^{ik_\parallel r\cos\theta}
$$

ここで $P(r)$ をテイラー展開する。

$$
P(r) = e^{\Omega[1-f(r/\xi)]}-1 = \sum_{m=1}^{\infty}\frac{1}{m!}\left\{\Omega\left[1-f\left(\frac{r}{\xi}\right)\right]\right\}^m \qquad (30)
$$

これを式 27 および式 28 に代入してまとめると、

$$
\begin{aligned}
S_{\rm diff}(\boldsymbol{k}_\parallel, k_\perp) &= 2\pi e^{-\Omega}\sum_{m=1}^{\infty}\frac{1}{m!}\Omega^m\int_0^\infty rdr\left[1-f\left(\frac{r}{\xi}\right)\right]^m J_0(k_\parallel r) \\
&= 2\pi\xi^2e^{-\Omega}\sum_{m=1}^{\infty}\frac{1}{m!}\Omega^m\int_0^\infty XdX\,[1-f(X)]^m J_0(k_\parallel\xi X) \\
&= 2\pi\xi^2e^{-\Omega}\sum_{m=1}^{\infty}\frac{1}{m!}\Omega^m F(m, k_\parallel\xi) \qquad (31)
\end{aligned}
$$

となる。 2 番目の式では $r=\xi X$ として積分変数を無次元の変数 X にした。 3 番目の式に現れる $F(m, k_\parallel\xi)$ は

$$
F(m, Y) = \int_0^\infty XdX\,[1-f(X)]^m J_0(YX)
$$

と定義される関数である。

さらにここで $f(X)$ の具体的な形として、式 19 のようなスケール関数 $f(X) = 1-e^{-X^{2\alpha}}$ を利用することにする。代入して $X' = m^{\frac{1}{2\alpha}}$ および $Y' = m^{-\frac{1}{2\alpha}}Y$ となるような変数 X'、Y' を用いることによって、

$$
S_{\rm diff}(\boldsymbol{k}_\parallel, k_\perp) = 2\pi\xi^2e^{-\Omega}\sum_{m=1}^{\infty}\frac{1}{m!}\frac{1}{m^{1/\alpha}}\Omega^m F_\alpha(k_\parallel\xi m^{-\frac{1}{2\alpha}}) \qquad (32)
$$

を得る。つまり $F(m,Y) = \frac{1}{m^{1/\alpha}}F_\alpha(Ym^{-\frac{1}{2\alpha}})$ と置き換わったわけである。この F_α の形は

$$
F_\alpha(Y') = \int_0^\infty X'dX'\,e^{-X'^{2\alpha}}J_0(X'Y')
$$

となる。

この関数 $F_\alpha(Y')$ は $Y'=0$ で最大となる偶関数になる。ここで $F_\alpha(Y'_g)=0.5F_\alpha(0)$ となるような $Y'g$ を定義すると、$F_\alpha(k_\parallel \xi m^{-\frac{1}{2\alpha}})$ を $k_\parallel$ の関数と見たときの半値幅は

$$\mathrm{FWHM} = 2Y'_g \xi^{-1} m^{\frac{1}{2\alpha}}$$

となる。したがって式 32 は、半値幅が $\xi^{-1}m^{\frac{1}{2\alpha}}$ に比例して変わるような m 次の項の重ねあわせによって表現されていることになる。ここで係数項の $\frac{\Omega^m}{m!m^{1/\alpha}}$ は $m>\Omega$ で急激に減少するから、重要なのは $m\sim\Omega$ までの項ということになる。

ところで $\alpha=0.5$ のときは

$$F_{1/2}(Y') \propto \frac{1}{[1+Y'^2]^{3/2}}$$

となる。これは 2 次元の Lorentz 関数と呼ばれる。

2.4 Diffuse 成分の漸近形

2.4.1 $\Omega \ll 1$ のとき

この場合重要なのは $m=1$ の項のみとなる。

$$S_{\mathrm{diff}}(\boldsymbol{k}_\parallel, k_\perp) \sim 2\pi\Omega\xi^2\, e^{-\Omega} F_\alpha(k_\parallel \xi) \tag{33}$$

したがってこのとき Diffuse 成分の半値幅は $\mathrm{FWHM}=2Y'_g/\xi$ となる。ただし $\Omega \ll 1$ は δ 成分がかなり大きいので、測定は難しいかもしれない。

なお Y'_g は α に依存する量であることに注意する。

2.4.2 $\Omega \gg 1$ のとき

この条件は逆に δ 成分が非常に小さい場合である。詳しい式の導出は省略するが、式 32 の Bessel 関数の項を一度 Taylor 展開してまた戻す、という作業をすると、

$$S_{\mathrm{diff}}(\boldsymbol{k}_\parallel, k_\perp) \sim \left(\eta k_\perp^{-\frac{1}{\alpha}}\right)^2 F_\alpha\left(k_\parallel \eta k_\perp^{-\frac{1}{\alpha}}\right) \tag{34}$$

となる。η は 2.1 節の最後に出てきた量で、定義は $\eta=\xi w^{-\frac{1}{\alpha}}$ であった。

したがってこの場合の半値幅は $\mathrm{FWHM}=2Y'_g\eta^{-1}(k_\perp)^{1/\alpha}$ となる。

3 自己アフィンパラメータの決定法

まず重要なことは、ミクロなスケールでの表面の特性は Diffuse 成分 S_{diff} に表れる、ということである。 α と ξ が該当する。

3.1 w : マクロスケールでの RMS ラフネス

1. δ 成分の強度 I_δ は $e^{-(k_\perp w)^2}$ に比例するので、$\ln(I_\delta)$ と $(k_\perp)^2$ の傾きが $-w^2$ となる。

2. 構造因子の δ 成分 $S_\delta(\boldsymbol{k}_\parallel, k_\perp) = (2\pi)^2 e^{-\Omega}\delta(\boldsymbol{k}_\parallel)$ であるから、

$$\int d^2k_\parallel\, S_\delta(\boldsymbol{k}_\parallel, k_\perp) = (2\pi)^2 e^{-\Omega}$$

である。一方構造因子全体の積分は

$$\begin{aligned}\int d^2k_\parallel\, S(\boldsymbol{k}) &= \int d^2k_\parallel \int d^2r\, C(k_\perp, \boldsymbol{r}) e^{i\boldsymbol{k}_\parallel\cdot\boldsymbol{r}} \\ &= \int d^2r\, C(k_\perp, \boldsymbol{r}) \int d^2k_\parallel\, e^{i\boldsymbol{k}_\parallel\cdot\boldsymbol{r}} \\ &= \int d^r\, C(k_\perp, \boldsymbol{r})(2\pi)^2\delta(\boldsymbol{r}) \\ &= (2\pi)^2\end{aligned}$$

である。$H(\mathbf{0}) = 0$ なので $C(k_\perp, \mathbf{0}) = 1$ であることを利用している。
したがって両者の比 R_δ は

$$R_\delta \equiv \frac{\int d^2k_\parallel\, S_\delta(\boldsymbol{k}_\parallel, k_\perp)}{\int d^2k_\parallel\, S(\boldsymbol{k})} = e^{-\Omega}$$

となり、2 と同じ方法で w^2 が求まる。

3. δ 成分の代わりに Diffuse 成分の比 R_D を用いれば、

$$R_D \equiv \frac{\int d^2k_\parallel\, S_{\mathrm{diff}}(\boldsymbol{k}_\parallel, k_\perp)}{\int d^2k_\parallel\, S(\boldsymbol{k})} = 1 - e^{-\Omega}$$

から求められる。もし $\Omega \ll 1$ なら $R_D \sim \Omega$ となる。

3.2 ξ: 横相関長

2.4.1 節で述べたように、$\Omega \ll 1$ のとき、 Diffuse 成分の半値幅が $\mathrm{FWHM} = 2Y_g'/\xi$ となることを利用する。

3.3 α: ラフネス指数

逆に $\Omega \gg 1$ のときは、2.4.2 節で述べたように、Diffuse 成分の半値幅が $\mathrm{FWHM} \propto (k_\perp)^{1/\alpha}$ となることを利用する。
また式 34 より $S_{\mathrm{diff}}(\mathbf{0}, k_\perp) \propto (k_\perp)^{-2/\alpha}$ であることを利用しても求めることができる。

参考文献

[1] H. -N. Yang, G. -C. Wang and T. -M. Lu; *Diffraction from rough surfaces and Dynamic Growth Fronts*, World Scientific (Singapore), 1993 (ISBN: 981-02-1536-3)