

物性研を離れて

高橋 敏男

早いもので昨年3月末に定年退職してから10ヶ月近く経ちます。1986年4月から29年間もの長きにわたり物性研にお世話になることになりました。昨年4月からは東京学芸大学に研究員としてお世話になっています。

振り返ってみると結果的に大学時代から退職まで東大に在籍在職することになりました。昨年3月の退職記念講演会でも、この間の研究を「回折」、「表面」、「放射光」をキーワードとしてお話しましたが、動力的回折についてはほとんど触れる時間が無かったので、ここでは、その点も踏まえて述べさせていただきます。動力的回折という言葉は、物性研ではなじみのない方が多いかもしれませんが、X線回折理論には、1回散乱近似の運動学的回折理論と、多重散乱効果をとりのれた動力的回折理論とがあります。ほとんど全ての人は、結晶構造解析に代表されるように運動学的回折理論の枠組みでX線回折散乱現象を取り扱っていますが、私自身は、以下の述べるように動力的回折から研究を始めることになりました。

まず、物性研との関わりについて触れます。最初の出会いは、間接的ですが1972年に大学院生として六本木キャンパス生産研の辻泰・菊田愷志研究室に行ったときです。修士課程のテーマは、X線の動力的回折過程で放出される電子収量の入射角依存性です。今日では、X線定在波法と呼ばれている方法の基礎的な研究です。具体的には、高真空中でSi単結晶平板を極微小回転させながら、X線のロックン曲線(ダーウィン曲線)と同時にX線で励起放出される電子をエネルギー分析してその収量変化を測定するというものです。キーワードの原点がここにあるのがお分かりかと思います。当時、菊田先生は木工の高良研究室から生産研に移られて間もない頃で、私は最初の大学院生だったこともあり周囲には動力的回折について気軽に聞ける人は皆無と云ってよい状況でした。そんな時に、タイミングよく雑誌固体物理の初等固体物理講座に物性研の三宅静雄先生が10回にわたる連載で動力的回折理論の記事を執筆されており、毎号出版されるのを楽しみに精読した記憶があります。今日でも日本語で書かれたバイブルの1つになっていると思います。また、参考文献を調べようとすると、生産研にはほとんど雑誌等がなかったのですが、同じ建物の物性研図書室に行けばほぼ揃っていたので実に恵まれた環境でした。その後、1979年秋に菊田先生に連れられて木工に移ることになった時には、物性研にお世話になるとは想像だにしていませんでした。

上述のX線定在波法に関する実験を通して、X線の動力的回折では実験と計算が極めてよく一致することを体験し動力的回折のとりこになったと言えます。8keVのX線でSiのK殻やL殻から放出される光電子収量のX線入射角依存性は計算曲線と線の幅でぴったり一致します。今から考えると、近年はやりのバルク敏感高エネルギー光電子の測定をやっていたことになります。Si単結晶表面には数nm程度の自然酸化膜があり、その中のSiから放出される光電子も含まれるはずですが、光電子の脱出深さが深いためにそれらの寄与は無視できたからです。一方、1.6keVのSi-KLLオージェ電子の場合には表面敏感になっており、入射角依存性は計算曲線から大きくずれ、酸化膜中のSi原子の寄与を適当な仮定のもとに取り入れないと説明できないことが分かりました。

博士課程の途中で菊田研の助手に採用して頂いてからは、いろいろな研究に携わることになりました。そのうちの1つが中性子の動力的回折を利用した中性子干渉計の研究です。原研との協力研究とともに物性研の共同利用にもお世話になり、共同利用というシステムを初めて知ることになりました。物性研の3軸回折計を利用させて頂いたのですが、使い方が全く異なるので、ビームタイムごとに装置を持ち込んで実験を行っていました。星埜禎男先生が運転される物性研のバンに装置を便乗させて頂き東海村までご一緒させて頂いたこともしばしばありました。当時助手だった藤井保彦先生には多くのことを教えて頂きました。



しばらくすると、フォトン・ファクトリ(PF)計画が認められ、その準備研究として物性研の細谷資明先生が代表で特定研究「物質のミクロ構造の動的解析」(1979~1981)が走り、いつか研究テーマに関わることになりました。その中の1つのテーマがX線回折散乱を利用して表面構造を研究するというものです。表面X線回折、X線定在波法、XAFSなどを念頭において超高真空装置を設計製作し、放射光の利用が始まる前の1981年度中にはPF実験ホールの空きスペースに置いて、超高真空装置の排気性能テストなどを行っていました。

このような事情で、PFのビームを初期のころから使わせて頂くことになりました。まず、表面X線回折法、すなわちX線回折で表面の原子配列を決定できないかということから取り組みました。その頃はまだSi(111)-7x7表面構造も決定されていない時代背景でした。低速電子線回折をイメージして実験を重ねているうちに、今日ではCTR(Crystal Truncation Rod)散乱と呼ばれるのと同様な方法でSi(111)清浄表面にBiやAgが1原子層吸着したときにできる長周期構造の原子配列をいち早く決定するができました。この表面X線回折は、1回散乱というX線の特徴を生かしたもので、信号強度は弱いのですがひとたび観測結果が得られれば、電子回折など他の手法に比べて精度・信頼性ともに高い結果が得られるので決定的な方法といえます。記念講演会で述べたので詳しくは触れませんが、表面X線回折は放射光の恩恵を大いに受ける分野の1つとして認識され、その後の発展につながることになりました。この間、PFやSPRING-8ではビームライン建設に携わらせて頂き多大なるご支援を受けました。この表面X線回折の研究を通して教えられたことは、X線回折データはウソをつかないということです。データ解析がうまくいかないのは、データのせいではなく、それを解析する側の問題だということです。そんな経験もあり、近年はモデル・フリーに表面界面薄膜構造を解析することに取り組んでおり、科研費新学術領域「3D活性サイト科学」の中の1つテーマへと発展しています。

このように、いわゆるX線構造解析については素人だったのですが、表面X線回折の研究を通して運動学的回折理論と付き合い始めることになりました。それまであまり意識をしていなかったのですが、最初に取り組んだ動学的回折と運動学的回折の枠組みの表面回折は共通性が高いことに気が付きました。というのは、いずれの実験でも試料は平板状の試料で、表面というものが定義できる試料です。しかも、回折現象を記述する際に、表面での波面の連続性を境界条件として取り入れる必要があるからです。これに対して、通常の単結晶構造解析などで使う運動学的回折理論では、表面の形状は補正という形で入ることはあっても回折現象そのものには関係しません。

このような観点から、平板結晶における動学的回折理論と表面回折の運動学的回折理論を統一し定式化することができました。その結果、ダーウィン曲線とCTR散乱とを1つの式で連続的に計算できるようになりました。ブラッグ点付近では従来の動学的回折理論のダーウィン曲線に一致し、ブラッグ反射のテール部分は運動学的回折理論で記述されるCTR散乱に一致します。また、すれすれ入射の全反射やブラッグ角が90°の特殊なダーウィン曲線も統一的に理解することが分かりました。さらに、ダーウィン曲線とCTR散乱を同時に測定する多波回折現象も位相問題に関連して将来性のある測定法であることも分かりました。もともと動学的回折理論はエネルギーの流れを扱う理論なので、回折強度は反射率として表記されます。その結果、CTR散乱も反射率として計算でき、反射率が10のマイナス10乗以下になる場合もあり、あらためて放射光の必要性が認識されました。

このように放射光施設には、我が国で最初にX線ビームが利用できるようになった時から退職まで30年以上も利用させて頂き大変お世話になりました。表面X線回折法は、測定に時間を要することや特殊な回折装置を使う必要があり、必ずしも多くの人が使ええる環境にはあるとは言えませんが、測定系の改良で迅速測定も可能になりつつあり、さらに、コンピュータの性能向上とともに解析法にも新しい試みがいくなされていきます。試料としても基板の薄膜は多くの人の興味の対象となり得るので、今後より多くの人利用できるようになっていくと思っています。他方、X線定在波法など動学的回折に関わる研究は試料の制約が大きかったのですが、放射光でマイクロビームを利用出来るようになったので制約が緩和される可能性があり新たな展開がなされることを期待しています。中性子については、紙面の都合で触れることができませんでしたが、JRR-3で共同利用ビームライン建設にも携わらせて頂き、中性子の特徴を生かした研究も行うことができました。

放射光をとりまく状況は現在重大な局面にさしかかっていると云えます。私が院生の 1970 代前半はまさに X 線放射光リングの有効性が認識されその必要性が叫ばれたときで、その結果高エネ研での PF 建設計画が 1970 年代後半に決定し、1982 年から放射光を利用できるようになりました。PF が軌道にのった 1985 年頃からは次の大型放射光施設の必要性がユーザ団体を中心にもちあがり、建設場所を全国規模で検討し、結果として 1989 年に今の SPring-8 に地に正式決定しました。その頃は、強いリーダーシップを発揮する人たちのもとにユーザグループも建設計画の実現に向けて結束して協力していたことを肌で感じています。その当時に比べると、現在の建設計画は、無いものを初めて建設するのとは違いだいぶ異なる様相を呈しています。持続的に放射光科学が進展するよう英知を集結し建設計画を推進されることを切に望んでいます。

最後に、これまで研究を続けることができたのは東大・物性研というめぐまれた環境に在職させて頂いたこと、さらには研究期間を通して周囲の人々や研究室メンバー・学生に恵まれたお陰であり、この場をお借りしてお礼を申し上げたい。退職する最後まで陰で支えてくれた妻には感謝の言葉をおくりたい。

