

東京大学 大学院新領域創成科学研究科  
基盤科学研究系物質系専攻

平成18年度

修士論文

完全結晶の回折条件近傍における  
透過 X 線ビームの位置シフトに関する研究

2007年1月30日提出  
指導教員：雨宮 慶幸 教授 印



56113 : 栗山 徹

# 目次

<b>第 1 章 序論</b>	<b>1</b>
1.1 透過型 X 線移相子	1
1.2 X 線偏光解消子	2
1.3 X 線のビーム位置シフト	2
<b>第 2 章 偏光の一般論</b>	<b>5</b>
2.1 偏光	5
2.1.1 直線偏光	5
2.1.2 円偏光	5
2.1.3 楕円偏光	6
2.1.4 非偏光	7
2.2 ストークス・パラメーター	7
2.3 ポアンカレ球	9
2.4 ジョーンズ・ベクトル	10
2.5 ジョーンズ・マトリックス	11
2.6 ミュラー・マトリックス	11
<b>第 3 章 動力学的回折理論</b>	<b>13</b>
3.1 平面波理論	13
3.2 プロホ波が満たすべき方程式	14
3.2.1 境界条件	15
3.2.2 2 波近似	15
分散球	15
3.2.3 分散面と境界条件	16
3.3 ブラッグケースとラウエケース	17
3.3.1 ラウエケース	17
複屈折	19
3.3.2 ブラッグケース	19
3.3.3 結晶中でのエネルギーの流れ	20
3.4 球面波理論	21
3.5 乱れた結晶での理論	21
3.5.1 アイコナル理論	22
3.5.2 波動理論	25
<b>第 4 章 ベリー位相とビームシフト</b>	<b>27</b>
4.1 ベリー位相について	27
4.2 動力学的回折理論と波束のベリー曲率	28

4.2.1	波束の解析力学	28
	運動方程式の導出について	29
4.2.2	ベリー曲率の影響による波束シフト	30
<b>第 5 章</b>	<b>検出器の原理</b>	<b>31</b>
5.1	イオンチェンバー	31
5.2	シンチレーションカウンター	32
5.3	CCD 型 X 線検出器	34
<b>第 6 章</b>	<b>実験装置</b>	<b>35</b>
6.1	ユニバーサル X 線エリプソメーター	35
6.2	各実験装置について	35
6.2.1	スリット	35
6.2.2	チャンネルカット型偏光子 (モノクロメーター)	35
6.2.3	透過型 X 線移相子	37
6.2.4	イオンチェンバー	37
6.2.5	シンチレーションカウンター	37
6.2.6	CCD 型 X 線検出器	37
6.2.7	その他	37
	アンプ	37
	V-F コンバーター	38
	偏光子用ゴニオメーター	38
	移相子用ゴニオメーター	38
6.3	シンクロトロン放射光	38
6.3.1	放射光の発生原理	38
	偏光性	39
6.3.2	PF の放射光の特性	40
<b>第 7 章</b>	<b>実験</b>	<b>41</b>
7.1	予備実験:スリットを用いた実験	41
7.1.1	スリットでの強度分布の直接観察	41
7.1.2	強度変化からのビーム位置推定	42
7.2	CCD 型 X 線検出器による実験	43
7.2.1	実験配置	43
7.2.2	カメラ長 400 mm、おもて面での実験	44
7.2.3	結晶裏面を用いた実験	45
7.2.4	カメラ長 700 mm、おもて面を用いた実験	45
<b>第 8 章</b>	<b>実験結果</b>	<b>47</b>
8.1	予備実験:スリットを用いた実験	47
8.1.1	スリットでの強度分布の直接観察	47
8.1.2	強度変化からのビーム位置推定	47
8.2	CCD 型 X 線検出器を用いた実験	51
8.2.1	カメラ長 400 mm	51

CCD 型 X 線検出器のイメージ	51
ビームプロファイル	56
重心位置シフト	57
8.2.2 結晶裏面を用いた実験	60
8.2.3 カメラ長 700 mm での実験	60
<b>第 9 章 議論と考察</b>	<b>63</b>
9.1 予備実験:スリットを用いた実験	63
9.1.1 シフト量の絶対値と方位角からの考察	63
9.1.2 収差補償型配置で用いた場合の結果	63
9.2 CCD 型 X 線検出器を用いた実験	63
9.2.1 重心位置変化	63
9.2.2 ビームの広がりについて	63
9.2.3 ビーム端の議論	68
9.2.4 重心移動の差での議論	68
9.2.5 ベリー位相を導入した理論との関係	70
<b>第 10 章 まとめと今後の展望</b>	<b>71</b>

# 第1章 序論

シンクロトロン放射光は、

- 高い輝度
- 遠赤外から硬 X 線にわたる連続的なスペクトル
- 偏光特性

などのユニークな特長をもつため、応用面での汎用性が非常に高く、医学・生物・物理・化学などの分野で積極的に活用されている。

そのうち、X 線領域の偏光性を利用した研究では X 線磁気円二色性 (X-ray Magnetic Circular Dichroism, XMCD) [1, 2]、X 線自然直線二色性 (X-ray Natural Linear Dichroism, XNLD) [3, 4] などが盛んに行われており、物質の磁性やカイラリティを解明するのに大きな役割を果たしている。

## 1.1 透過型 X 線移相子

X 線、特に 6-12 keV の硬 X 線領域の偏光を制御する素子としては、透過型 X 線移相子 [7] が利用される (原理は 2 章にて述べる)。透過型 X 線移相子は、ダイヤモンドなどの完全結晶を用い、動力的回折効果による生ずるブラッグ条件近傍での複屈折を利用している。

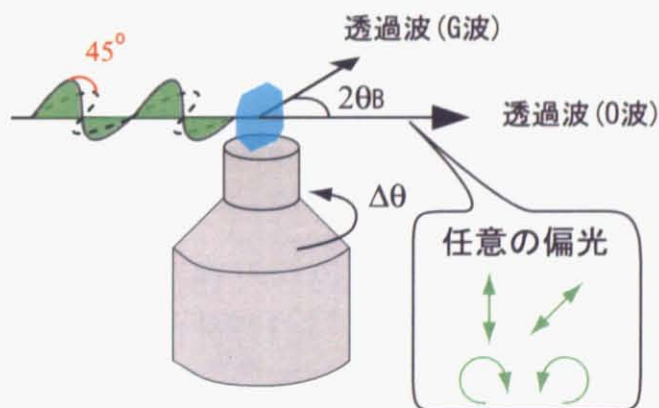


図 1.1: 透過型 X 線移相子

電場ベクトルが入射面内にある  $\pi$  偏光と、電場ベクトルが入射面に垂直な  $\sigma$  偏光の位相差  $\delta$  は、式 (1.1) ように与えられる。

$$\delta = -\frac{\pi}{2} \left[ \frac{r_e^2 \Re(F_h F_h^*) \lambda^3 \sin(2\theta_B)}{\pi^2 V^2 \Delta\theta} l \right] \quad (1.1)$$

ここで、 $l$ は結晶の厚さ、 $\Delta\theta$ はブラッグ条件からのずれ角、 $F_h$ は構造因子、 $r_e$ は古典電子半径、 $V$ は単位胞の体積である。すなわち、ブラッグ条件からのずれ角を制御することにより、偏光状態を任意にコントロールすることができる。例えば、左右の円偏光を得たい場合は $-20''$  or  $20''$ 、縦偏光を得たい場合は $-10''$  or  $10''$ のようにずれ角をつけて透過させる。例として、 $\Delta\theta$ と $\delta$ の関係は図 1.2 のように与えられる。

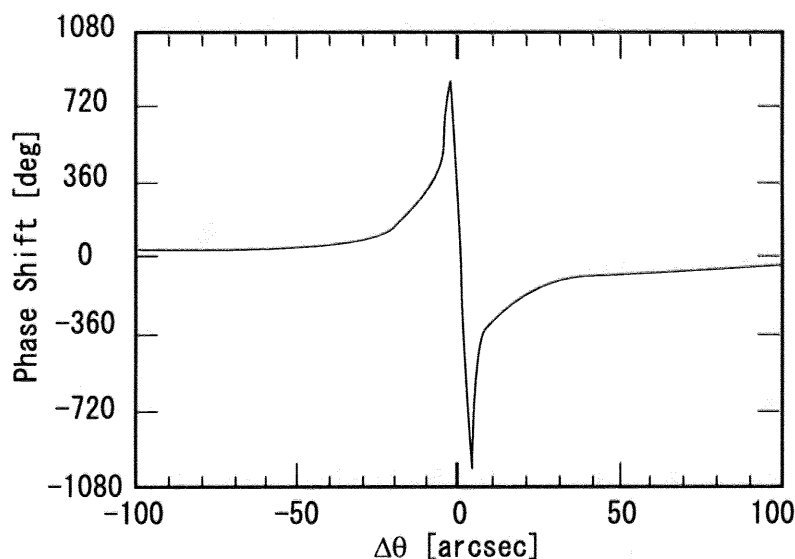


図 1.2: 移相能  $\delta$  とブラッグ角からのずれ角  $\Delta\theta$  の関係 [9]

## 1.2 X線偏光解消子

高い偏光 X 線が得られるということはシンクロトロン放射光の大きな特長のひとつであるが、かえって偏光の存在がデータ解析を困難にする場合もある。シンクロトロン放射光の高い輝度という特長は利用したいが、偏光は必要ない場合に、偏光を解消する素子があれば非常に有用である。

そこで雨宮研では、1.1 で述べた透過型 X 線移相子を利用した偏光解消素子を開発した。

通常、偏光を生成する素子として用いる場合、移相子はジャストブラッグから外れた  $\Delta\theta$  を用いるが、偏光解消子として利用する場合にはジャストブラッグを用いる。ジャストブラッグにおいては図を見れば明らかなように移相量が激しく振動する。入射 X 線は発散しているため、発散角の内部で異なる変調を受けた X 線が混ざりあい、擬似的に偏光が解消されたビームが生成される (図 1.3)。

デポライザーのエリプソメトリーによる評価、ストークスパラメーター (参考文献 [15] あるいは 2 章を参照) による評価を行った結果、偏光度がほぼ 1 だった X 線が、解消子を用いることにより偏光度が 0.5~0.15 程度になることが分かった。この偏光度は X 線管以下である。

## 1.3 X線のビーム位置シフト

透過型 X 線移相子を用いる際、それぞれの生成する偏光状態によって、ビーム位置が変動する現象が知られていた [8]。また、回折波においても同様の現象が起きることが知られていた [11]。

ビームシフトが存在すると、厚さムラのある試料を対象とする場合正しい測定を行うことが出来なくなるため、定量的評価が望まれる。実際、ビーム広がりによって XMCD の測定に誤差が生じる報告もなされている [10]。

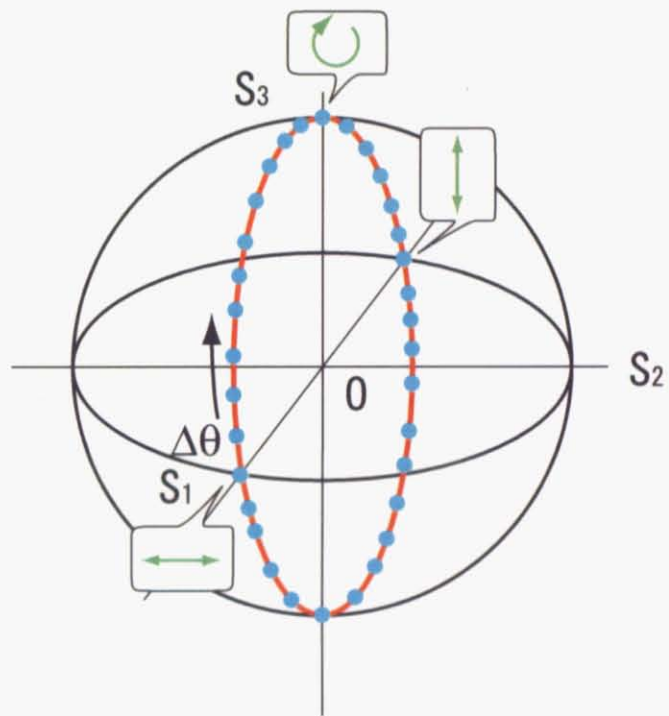


図 1.3: 偏光解消子の原理。 $\Delta\theta$  を変化させることにより、偏光状態がポアンカレ球 (2 章で解説) の  $(1,0,0)$  から  $(0,0,1)$  と  $(-1,0,0)$  を通る周上で変化する。異なる楕円率をもった偏光が混ざり合うので、「擬似的に」偏光が解消されることになる。

また、ビームシフトは、歪んだ結晶での動力的回折理論、あるいは歪んだ結晶中でベリー位相 [12] の概念を取り入れた理論 [14] によって理論的に説明できる。特にベリー位相の概念を取り入れたビームシフト理論は興味深く、ビームシフトの観察から逆に理論の妥当性を調べることは物理的にも興味深い。

われわれは

- 予備実験：スリットを用いた実験
- CCD 型 X 線検出器を用いた直接観察

により、ビームの位置移動に関する定性・定量的評価を試みた。

それぞれの実験については、7 章で詳しく説明するが、概要をここに述べる。

スリットを用いた実験(予備実験)では、スリットによるビーム形状のスキャン、スリットでさえぎった部分の強度変化からシフトの大きさを調べた。CCD 型 X 線検出器を用いた直接観察では、ビームの形状・位置を直接観察することによって、どのようにシフトしているかを調べた。これらの実験の結果、ビームシフトはジャストブラッグ近傍で急激に大きくなることがわかった。これらの結果を、従来の動力的回折理論ならびにベリー位相の概念を導入した理論から検証するのが本論文の主旨である。



## 第2章 偏光の一般論

本章では、偏光の基礎的事項について述べる。

### 2.1 偏光

光は横波の電磁波として扱ってよい [15]。光波の振動ベクトルの振動方向が規則的なものおよびその状態を偏光とよぶ。

#### 2.1.1 直線偏光

たとえば、電場ベクトルが一定の平面上を振動しながら伝搬する光を考える。すなわち、電場ベクトルは

$$\mathbf{E} = (\hat{i}E_{0x} + \hat{j}E_{0y}) \cos(kz - \omega t) \quad (2.1)$$

と表現される。ただし、光が進む方向を  $z$  軸の正の向きにとり、 $x, y$  は右手系にとる。振幅が  $(\hat{i}E_{0x} + \hat{j}E_{0y})$  に固定された直線偏光である。この波を、 $xz$  面内と  $yz$  面内で直線偏光している 2 つの波に分解すると

$$\mathbf{E}_x(z, t) = \hat{i}E_{0x} \cos(kz - \omega t) \quad (2.2)$$

$$\mathbf{E}_y(z, t) = \hat{j}E_{0y} \cos(kz - \omega t + n\pi) \quad (2.3)$$

と表現できる。実は、直交する直線偏光はすべての偏光状態の基底にすることができる。式 (2.3) の  $n\pi$  を任意の値  $\varepsilon$  に設定すれば、円偏光、楕円偏光を表現することが可能である。

#### 2.1.2 円偏光

もう一つの簡単な偏光状態としては、直交する直線偏光の振幅が等しく、互いの位相差  $\varepsilon$  が  $\varepsilon = -\pm\pi/2 + 2m\pi (m = 0, \pm 1, \pm 2)$  になっている状態が考えられる。これは、電場ベクトルが時間とともに円を描くいわゆる円偏光になっている。このときの電場ベクトルは

$$\mathbf{E} = E_0[\hat{i} \cos(kz - \omega t) \pm \hat{j} \sin(kz - \omega t)] \quad (2.4)$$

と表現できる。

式 (2.4) の複号が正の場合を考える。  $t = 0$  では、 $\mathbf{E}$  は

$$\left. \begin{aligned} \mathbf{E}_x &= \hat{i}E_0 \cos kz_0 \\ \mathbf{E}_y &= \hat{j}E_0 \sin kz_0 \end{aligned} \right\} \quad (2.5)$$

である。その後の時刻  $t = kz_0/\omega$  では

$$\left. \begin{aligned} \mathbf{E}_x &= \hat{i}E_0 \\ 0 & \end{aligned} \right\} \quad (2.6)$$

となり、波動が進んでくる先にいる観測者から見れば、合成された電場ベクトル  $\mathbf{E}$  は角周波数  $\omega$  で時計方向にまわっている。ここでは、このような円偏光を「右回りに円偏光している」と言うことにする。複号が負の場合は左円偏光となる。円偏光の左右の定義については様々な立場があり、文献などによっては正反対になっていることがしばしば見受けられ、混乱の原因となっている。

右円偏光と左円偏光を合成した場合、つまり式 (2.4) の複号を打ち消し合わせると、

$$\mathbf{E} = 2E_0 \hat{i} \cos(kz - \omega t) \quad (2.7)$$

となり、直線偏光になることがわかる。実は、円偏光を基底としてもすべての偏光状態を表すことができる。本論文のテーマの一つ、円二色性を議論する際には円偏光に分解して考えると比較的簡単に議論ができる。

### 2.1.3 楕円偏光

先に紹介した2つの偏光状態の一般的な状態が楕円偏光である。逆に言えば、直線偏光も円偏光も楕円偏光の特殊な場合にすぎない。

$$E_x = E_{0x} \cos(kz - \omega t) \quad (2.8)$$

$$E_y = E_{0y} \cos(kz - \omega t + \varepsilon) \quad (2.9)$$

が楕円偏光をあらわす電場ベクトルの式であるが、ここで式 (2.9) を展開する。楕円は時間に依存しない曲線なので、時間に依存する因子を取り除くことができるはずである。(2.9) は、

$$E_y/E_{0y} = \cos(kz - \omega t) \cos \varepsilon - \sin(kz - \omega t) \sin \varepsilon \quad (2.10)$$

となる。これを  $E_x/E_{0x}$  と組み合わせ、

$$\frac{E_y}{E_{0y}} - \frac{E_x}{E_{0x}} \cos \varepsilon = -\sin(kz - \omega t) \sin \varepsilon \quad (2.11)$$

と書ける。さらに、

$$\sin(kz - \omega t) = [1 - (E_x/E_{0x})^2]^{1/2} \quad (2.12)$$

であるから、

$$\left( \frac{E_y}{E_{0y}} - \frac{E_x}{E_{0x}} \cos \varepsilon \right)^2 = [1 - (E_x/E_{0x})^2] \sin^2 \varepsilon \quad (2.13)$$

となり、項を入れ替えると結局

$$\left( \frac{E_y}{E_{0y}} \right)^2 + \left( \frac{E_x}{E_{0x}} \right)^2 - 2 \left( \frac{E_y}{E_{0y}} \right) \left( \frac{E_x}{E_{0x}} \right) \cos \varepsilon = \sin^2 \varepsilon \quad (2.14)$$

を得る。これは、 $E_x$  軸、 $E_y$  軸に対して

$$\tan 2\alpha = \frac{2E_{0x}E_{0y} \cos \varepsilon}{E_{0x}^2 - E_{0y}^2} \quad (2.15)$$

で表される角度  $\alpha$  だけ傾いた楕円をあらわす。

## 2.1.4 非偏光

通常の光源は、ランダムな向きの原子からなり、励起された原子は  $10^{-8}$  秒間偏光した波を放射する。同じ周波数の波は結合して、偏光した波を構成するが、その状態は  $10^{-8}$  秒間しか持続しない。全体として偏光状態は不規則に変化し、統一的に表すことが出来ない。この状態のことを非偏光という。実際は偏光している成分がランダムなだけであり、この言葉は語弊があるかも知れない。

これまで、完全に偏光している状態と完全にランダムに偏光している状態の両極端なケースについて考えたが、実際の光源はそのどちらでもなく、両方の状態が混ざり合い、「部分的に偏光」している。

## 2.2 ストークス・パラメーター

ストークス・パラメーターと呼ばれる量は、1852年、イギリスの物理学者ストークスによって考え出された。この4つの量は、部分偏光も含めて偏光を数学的に記述することのできる、偏光の現代的表現である。

まず、4枚1組のフィルターを考える。すべてのフィルターは、「自然光」の証明下では入射光の半分を通過させ半分を除去するとする。たとえば、第1のフィルターは等方的で、すべての偏光状態について等しく通過することができ、第2のフィルター、第3のフィルターは透過軸がそれぞれ水平と、水平に対して  $45^\circ$  をなす直線偏光子とする。第4のフィルターは左円偏光を通さない円偏光子とする。これはあくまで無数にあるフィルターの選び方の一例であるが、今後の議論はこのフィルターを想定して行なう。

フィルターの1枚1枚は、調べているビームの光路中に1枚だけで置かれ、それぞれのフィルターを通過したビームの強度  $I_0, I_1, I_2, I_3$  は偏光状態には依存しない計測器で測られる。このときストークス・パラメーターの便宜的な式は、

$$S_0 = 2I_0 \quad (2.16)$$

$$S_1 = 2I_1 - 2I_0 \quad (2.17)$$

$$S_2 = 2I_2 - 2I_0 \quad (2.18)$$

$$S_3 = 2I_3 - 2I_0 \quad (2.19)$$

となる。フィルターの定義により、 $S_0$  は単なる入射強度であることが容易に分かる。 $S_1$  は偏光が水平方向の直線偏光 ( $S_1 > 0$ ) か、鉛直方向の直線偏光 ( $S_1 < 0$ ) かを反映するパラメーターになっている。もし  $S_1 = 0$  だったならば、入射光は  $\pm 45^\circ$  の楕円偏光あるいは円偏光か、非偏光かである。同様に  $S_2$  は  $+45^\circ$  の直線偏光と  $-45^\circ$  の直線偏光とどちらに似ているかを示している。最後の  $S_3$  は円偏光が右回りか左回りかを示すパラメーターになっている。

ここで、準単色光の式

$$\mathbf{E}_x(t) = \hat{i}E_{0x}(t) \cos[(\bar{k}z - \bar{\omega}t) + \varepsilon_x(t)] \quad (2.20)$$

$$\mathbf{E}_y(t) = \hat{j}E_{0y}(t) \cos[(\bar{k}z - \bar{\omega}t) + \varepsilon_y(t)] \quad (2.21)$$

を考え、簡単な計算を行なうと  $S$  は次のように書ける。

$$S_0 = \langle E_{0x}^2 \rangle_T + \langle E_{0y}^2 \rangle_T \quad (2.22)$$

$$S_1 = \langle E_{0x}^2 \rangle_T - \langle E_{0y}^2 \rangle_T \quad (2.23)$$

$$S_2 = \langle 2E_{0x}E_{0y} \cos \varepsilon \rangle_T \quad (2.24)$$

$$S_3 = \langle 2E_{0x}E_{0y} \sin \varepsilon \rangle_T \quad (2.25)$$

ただし、 $\varepsilon = \varepsilon_x - \varepsilon_y$  とした。このパラメーターは強度に比例している。もし、入射光が完全単色光ならば  $E_{0x}, E_{0y}, \varepsilon$  は時間に依存しないので、上式の  $\langle \rangle$  を省くことによってパラメーターが得られる。また、ビームが偏光していない場合、 $\langle E_{0x}^2 \rangle_T = \langle E_{0y}^2 \rangle_T \geq 0$  であり、 $\langle \cos \varepsilon \rangle = \langle \sin \varepsilon \rangle = 0$  であるから、パラメーターは  $S_0$  のみ値をもち他は全て 0 となる。

完全に偏光した光に対しては、

$$S_0^2 = S_1^2 + S_2^2 + S_3^2 \quad (2.26)$$

が成り立つ。また、部分的に偏光している一般の場合偏光度が

$$V = (S_1^2 + S_2^2 + S_3^2)^{1/2} / S_0 \quad (2.27)$$

で与えられる。便宜上、このパラメーターはベクトルで表現され、ストークスペクトルとよばれる。

表 2.1: 偏光状態に対するストークスペクトル。大きさは  $S_0$  が 1 になるように規格化してある。

偏光状態	ストークスペクトル
水平直線偏光	$\begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$
垂直直線偏光	$\begin{pmatrix} 1 \\ -1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$
+45° の直線偏光	$\begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}$
-45° の直線偏光	$\begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ -1 \\ 0 \end{pmatrix}$
右円偏光	$\begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}$
左円偏光	$\begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ -1 \end{pmatrix}$

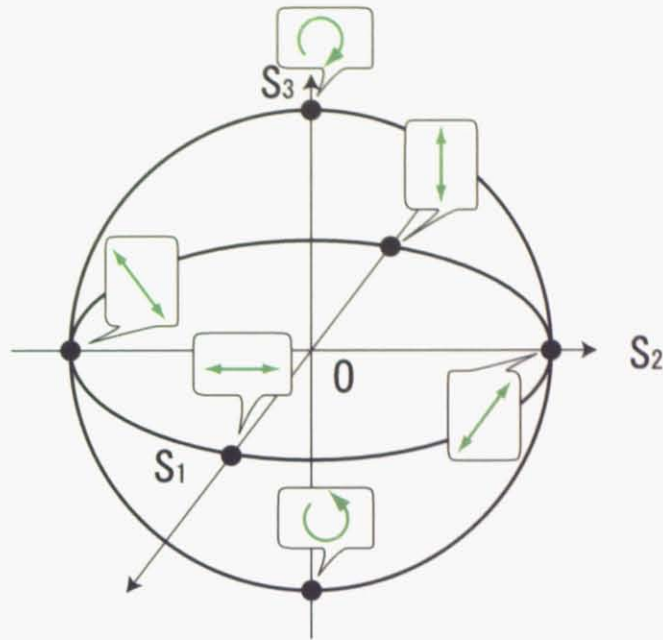


図 2.1: ポアンカレ球

## 2.3 ポアンカレ球

ストークスペクトルを基礎として、偏光を直感的に理解できる新しい表現がつけられる。まず、ストークスペクトルの  $S_1, S_2, S_3$  を軸とする三次元座標系を考える (図 2.1)。いま、入射光が完全に偏光していると仮定すると、たとえば  $(1,0,0)$  は表 2.1 から水平直線偏光を表す。同様に、 $(-1,0,0)$  は垂直方向の直線偏光を表す。 $(0,1,0)$  を考えると、斜め  $45^\circ$  に直線偏光している。 $(0,-1,0)$  は  $-45^\circ$  の方向の直線偏光である。また、 $(0,0,1)$  は右円偏光、 $(0,0,-1)$  は左円偏光を表す。

これらを総合的に考えると次のようになる。ポアンカレ球を地球とみなし、 $S_3$  軸を地軸とする。 $S_1 - S_2$  平面上において、たとえば  $S_1$  を基準と考えれば基準点は水平直線偏光している点を表す。赤道に沿って東に行くと、直線偏光の振動方向はかたむいてゆき、 $(0,1,0)$  で  $45^\circ$  に傾いた直線偏光を表す。さらに東に行くと、 $(-1,0,0)$  となり垂直直線偏光を表す。このように経度方向の情報は偏光の振動方向を表すことになる。さて、次に基準点から北に向かう。直線偏光は楕円偏光になり、徐々に円に近づいてゆく。北極、つまり  $(0,0,1)$  について右円偏光になる。そのままの方向に進んでゆくと、円偏光は次第につぶれて行き、 $(-1,0,0)$  で先ほど述べたように垂直方向の直線偏光になる。さらに進むと南極  $(0,0,-1)$  において左円偏光を与える。このように、緯度方向の情報は楕円率を与える。

以上のように、完全に偏光している光はポアンカレ球上の一点を指名することにより一意に定められることが分かった。次に、偏光が完全でない、一部分が偏光している場合を考える。この場合も経度と緯度の意味づけは同じである。ただし、2.27 式により、完全に偏光していない場合はストークスペクトルは球上に乗ることはない。この場合、ポアンカレ球の半径とストークスペクトルの長さの自乗が偏光度を与えることになる。

## 2.4 ジョーンズ・ベクトル

ストークス・パラメーターとは別に、完全に偏光した状態のみを記述できる方法が1954年、アメリカの物理学者ジョーンズによって考案された。

まず、電気ベクトルで偏光状態を表現することを考える。ジョーンズ・ベクトルは

$$\mathbf{E} = \begin{bmatrix} E_x(t) \\ E_y(t) \end{bmatrix} \quad (2.28)$$

と書ける。 $\mathbf{E}$  で全ての偏光状態を表現できる。 $\mathbf{E}$  を複素形式で書くと

$$\tilde{\mathbf{E}} = \begin{bmatrix} E_{0x}e^{i\varphi_x} \\ E_{0y}e^{i\varphi_y} \end{bmatrix} = e^{-i\omega t} \begin{bmatrix} \hat{E}_{0x}e^{i\varphi_x} \\ \hat{E}_{0y}e^{i\varphi_y} \end{bmatrix} \quad (2.29)$$

$\varphi_x$  と  $\varphi_y$  は適当な位相とする。この表現を用いると、例えば水平偏光または垂直偏光はそれぞれ

$$\tilde{\mathbf{E}}_h = \begin{bmatrix} E_{0x}e^{i\varphi_x} \\ 0 \end{bmatrix}, \tilde{\mathbf{E}}_v = \begin{bmatrix} 0 \\ E_{0y}e^{i\varphi_y} \end{bmatrix} \quad (2.30)$$

などと書くことができる。

二つのコヒーレントビームは、対応するジョーンズ・ベクトルの和で表される。たとえば  $+45^\circ$  の直線偏光は

$$\tilde{\mathbf{E}} = \tilde{\mathbf{E}}_h + \tilde{\mathbf{E}}_v = \begin{bmatrix} E_{0x}e^{i\varphi_x} \\ 0 \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} 0 \\ E_{0x}e^{i\varphi_y} \end{bmatrix} = E_{0x}e^{i\varphi_x} \begin{bmatrix} 1 \\ 1 \end{bmatrix} \quad (2.31)$$

と計算される。

多くの場合、絶対的な振幅と位相を知る必要それほどない。そのためしばしば簡単のためにジョーンズ・ベクトルを規格化して用いることがある。たとえばこのとき  $+45^\circ$  の直線偏光は

$$\mathbf{E}_{45} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 \\ 1 \end{bmatrix} \quad (2.32)$$

と規格化される。

他の偏光状態についても考察する。右回り円偏光は、y成分がx成分より  $90^\circ$  進んでいるので

$$\tilde{\mathbf{E}}_R = \begin{bmatrix} E_{0x}e^{i\varphi_x} \\ E_{0x}e^{i(\varphi_x - \pi/2)} \end{bmatrix} \quad (2.33)$$

規格化すると

$$\tilde{\mathbf{E}}_R = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 \\ -i \end{bmatrix} \quad (2.34)$$

となる。左円偏光は

$$\tilde{\mathbf{E}}_L = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 \\ i \end{bmatrix} \quad (2.35)$$

と表現される。もし  $E_{0x} \neq E_{0y}$  ならば、それはxとyのスケールを引き延ばすことに対応するから楕円偏光を表すことになる。

## 2.5 ジョーンズ・マトリックス

ジョーンズ・ベクトル  $\tilde{\mathbf{E}}_i$  で記述される偏光状態のビームが、何らかの光学素子に入射して  $\tilde{\mathbf{E}}_t$  として出力される場合を考える。このとき、 $\tilde{\mathbf{E}}_i$  と  $\tilde{\mathbf{E}}_t$  を結ぶ演算子は、 $\tilde{\mathbf{E}}$  が 2 次元のベクトルであることを考慮すると  $2 \times 2$  の行列になる。すなわち

$$\tilde{\mathbf{E}}_t = \mathbf{A}\tilde{\mathbf{E}}_i, \mathbf{A} = \begin{bmatrix} a_{11} & a_{12} \\ a_{21} & a_{22} \end{bmatrix} \quad (2.36)$$

という関係である。表 2.2 に簡単な光学素子のジョーンズ・マトリックスを示す。

光学素子が複数ある場合、そのジョーンズ・マトリックスは当然

$$\tilde{\mathbf{E}}_n = \mathbf{A}_n \mathbf{A}_{n-1} \cdots \mathbf{A}_1 \tilde{\mathbf{E}}_0 \quad (2.37)$$

のように積で表される。

## 2.6 ミュラー・マトリックス

ストークスベクトルを扱う行列が、1943 年 MIT の物理学教授ミュラーによって考案された。これは  $4 \times 4$  の行列であり、4 次元の縦ベクトルのストークスベクトルに対して作用する。基本的な考え方はジョーンズ・マトリックスと同じである。表 2.2 に基本的な素子のミュラー・マトリックスを示す。

たとえば、完全に偏光していないビームを直線偏光子に通したとき、

$$\mathbf{S}_t = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & 1 & 0 & 0 \\ 1 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{1}{2} \\ \frac{1}{2} \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} \quad (2.38)$$

のようになる。

表 2.2: ジョーンズマトリックスとミュラー・マトリックス

線形光学素子	ジョーンズマトリックス	ミュラー・マトリックス
水平方向の直線偏光子	$\begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix}$	$\frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & 1 & 0 & 0 \\ 1 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$
鉛直方向の直線偏光子	$\begin{bmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix}$	$\frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & -1 & 0 & 0 \\ -1 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$
+45° の直線偏光子	$\frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ 1 & 1 \end{bmatrix}$	$\frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$
-45° の直線偏光子	$\frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & -1 \\ -1 & 1 \end{bmatrix}$	$\frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ -1 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$
1/4 波長板 (速軸は鉛直)	$e^{i\pi/4} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -i \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \end{bmatrix}$
1/4 波長板 (速軸は水平)	$e^{i\pi/4} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & i \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & -1 & 0 \end{bmatrix}$
一体型右円偏光子	$\frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & i \\ -i & 1 \end{bmatrix}$	$\frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}$
一体型左円偏光子	$\frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & -i \\ i & 1 \end{bmatrix}$	$\frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ -1 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}$



## 第3章 動力的的回折理論

X線の散乱・回折を取り扱う際、小角散乱法や粉末回折などでは通常、運動学的回折理論が適用される。すなわち、電子によって散乱される光子は完全弾性衝突であり、なおかつ一回だけ散乱されると仮定して議論されている。これは、ボルン近似に対応する。これは、多結晶やモザイク結晶、アモルファスの散乱を取り扱う際には非常に良い近似である。

しかし、完全結晶によるX線の散乱を取り扱う際には状況が異なる。完全結晶中では、多重散乱が起き、X線は透過波、散乱波が相互に干渉していると考えられる。実際、シリコンやダイヤモンドの回折を取り扱う際には運動学的理論は破綻し、動力的回折理論がより正しい結果を与える。この動力的な効果により、われわれは光学素子に偏光子や透過型移相子などの機能を持たせることができる。以下では、参考文献 [17, 18] を参考に、動力的回折理論について述べる。

通常の光学の領域では、波長が十分に長い場合物質の分極率はほとんど変化しない定数として取り扱われる。しかし、X線の領域では誘電率は周期的な量として取り扱わなければならない。

### 3.1 平面波理論

結晶中での波のふるまいは、Maxwellの方程式(3.1-3.4)によって記述される。

$$\text{rot}\mathbf{H} = \frac{\partial\mathbf{D}}{\partial t} \quad (3.1)$$

$$\text{rot}\mathbf{E} = -\frac{\partial\mathbf{B}}{\partial t} \quad (3.2)$$

$$\text{div}\mathbf{D} = 0 \quad (3.3)$$

$$\text{div}\mathbf{B} = 0 \quad (3.4)$$

誘電率のかわりに、電気感受率  $\chi$  を導入し議論する。

$$\varepsilon = \varepsilon_0(1 + \chi) \quad (3.5)$$

である。 $\varepsilon$ が周期性を持つので、 $\chi$ も周期性をもつ。 $\chi$ は結晶格子の周期性を持つので、フーリエ級数展開をして、

$$\chi(\mathbf{r}) = \sum_g \chi_g \exp(i\mathbf{g} \cdot \mathbf{r}) \quad (3.6)$$

と書ける。

### 3.2 ブロッチ波が満たすべき方程式

ブロッチの定理によれば格子の周期をもつポテンシャルの中では、平面波  $\mathbf{E} = \exp\{i(\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r} - \omega t)\}$  は一般に変調を受けて、

$$\begin{aligned}\mathbf{E} &= \exp\{i(\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r} - \omega t)\} \sum_g \mathbf{E}_g \exp(i\mathbf{g} \cdot \mathbf{r}) \\ &= \exp(-i\omega t) \sum_g \mathbf{E}_g \exp(i\mathbf{k}_g \cdot \mathbf{r})\end{aligned}\quad (3.7)$$

の形に書き表される。ただし、 $\mathbf{k}_g = \mathbf{k}_0 + \mathbf{g}$ 。この結晶中の波をブロッチ波とよぶ。

この形の波を Maxwell 方程式に代入すると、以下のような波動方程式を得る。

$$\text{rotrot}\mathbf{E} = K^2(1 + \chi)\mathbf{E}\quad (3.8)$$

これを解くために、

$$\begin{aligned}\chi(\mathbf{r})\mathbf{E}(\mathbf{r}) &= \sum_{h'} \sum_h \chi_{h'} \exp(ih' \cdot \mathbf{r}) \mathbf{E}_h \exp(i\mathbf{k}_g \cdot \mathbf{r}) \\ &= \sum_g \sum_h \chi_{g-h} \mathbf{E}_h \exp(i\mathbf{k}_g \cdot \mathbf{r})\end{aligned}\quad (3.9)$$

と展開する。ただし、 $\mathbf{h}' + \mathbf{k}_h = \mathbf{k}_g$  である。これより、

$$\sum_g \left\{ k_g^2 \mathbf{E}_{g[\perp k_g]} - K^2 \mathbf{E}_g - K^2 \sum_h \chi_{g-h} \mathbf{E}_h \right\} \exp(i\mathbf{k}_g \cdot \mathbf{r})\quad (3.10)$$

任意の  $\mathbf{r}$  に対して (3.10) を成立させるには、 $\{\}$  の中の各項が 0 である必要がある。よって、

$$\frac{k_g^2 \mathbf{E}_{g[\perp k_g]} - K^2 \mathbf{E}_g}{K^2} = \sum_h \chi_{g-h} \mathbf{E}_h\quad (3.11)$$

を得る。動力的回折理論では、この式を満たすブロッチ波が結晶中で存在を許される。

また、ブロッチ波は、マクスウェルの方程式から、

$$\mathbf{k}_{gj} \cdot \mathbf{D}_{gj} = 0\quad (3.12)$$

$$\mathbf{k}_{gj} \cdot \mathbf{H}_{gj} = 0\quad (3.13)$$

となることを示すことができる。すなわち、ブロッチ波はベクトルが進行方向に垂直な横波を形成していることが分かる。ここで、

$$\mathbf{D}_{gj} = \varepsilon \left( \mathbf{E}_{gj} + \sum_h \chi_{g-h} \mathbf{E}_{hj} \right)\quad (3.14)$$

であり、 $\mathbf{E}$  は厳密には進行方向と直角ではない。しかし、 $\chi$  は微小量であるため、 $\mathbf{E}$  も横波とみなしてよい。つまり、基本方程式(3.11)は以下のようにかける。

$$\frac{k_g^2 - K^2}{K^2} \mathbf{E}_g = \sum_h \chi_{g-h} \mathbf{E}_h\quad (3.15)$$

### 3.2.1 境界条件

結晶中に存在を許されるブロッホ波は、式 (3.11) と、結晶表面での境界条件によって決められる。境界条件は、

$$E_t = E_t^a \quad (3.16)$$

$$D_z = D_z^a \quad (3.17)$$

となる。ただし、 $t$  は結晶の表面に平行な方向、 $z$  は結晶の表面に垂直な方向をあらわす。位相因子の連続性から、

$$k_{gt} = K_{mt} \quad (3.18)$$

である。振幅に関する境界条件は、

$$\sum_{k_{gt}=K_{mt}} \mathbf{E}_g \exp(ik_{gz}H) = \sum_{k_{gt}=K_{mt}} \mathbf{E}_m^a \exp(iK_{mz}H) \quad (3.19)$$

となる。

### 3.2.2 2 波近似

いま、入射波  $\mathbf{k}_o$  と、回折波  $\mathbf{k}_g$  のみが大きな値をもつ、すなわち一つの回折面だけが回折に関わる場合を考える。

結晶中での波は、

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_o \exp(i\mathbf{k}_o \cdot \mathbf{r}) + \mathbf{E}_g \exp(i\mathbf{k}_g \cdot \mathbf{r}) \quad (3.20)$$

基本方程式 (3.15) は、

$$\begin{aligned} (k_o^2 - k^2)E_o - K^2 P \chi_g E_g &= 0 \\ K^2 P \chi_g E_o - (k_g^2 - k^2)E_g &= 0 \end{aligned} \quad (3.21)$$

ここで、 $P$  は偏光因子であり、 $\sigma$  偏光のとき 1、 $\pi$  偏光のとき  $\cos 2\theta_B$  である。基本方程式 (3.15) において、 $\mathbf{E}_g$  について平行な成分を考えると出てくる。

永年方程式より、波数が満たすべき式は、

$$\begin{vmatrix} k_o^2 - k^2 & K - 2P\chi_{\bar{g}} \\ K^2 P \chi_g & k_g^2 - k^2 \end{vmatrix} = 0 \quad (3.22)$$

となる。

### 分散球

式 (3.22) を満たすような波数ベクトルは、以下のようなイメージで与えられる。逆空間において、 $\mathbf{k}_o$  と  $\mathbf{k}_g$  は終端がそれぞれ逆格子点  $O$  と  $G$  にある。始点は、永年方程式 (3.22) が満たす曲面にある。たとえば、運動学的回折理論では、逆格子点  $O$  と  $G$  を中心とした半径  $k$  の球の上に始点ベクトルがある。動力的な  $\chi_g$  を考慮する場合、球体は図 3.1 のような曲面を形成する。この面を分散面とよぶ。分散面において、逆格子点に近い側を  $\beta$  ブランチ、遠い側を  $\alpha$  ブランチとよぶ。

実際に回折に関わるのは球の交点 (ラウエ点) 近傍であるので、近似的に分散面の形を求める。 $k_o - k = \xi_o$ 、 $k_g - k = \xi_g$  とおく。 $\xi_o$ 、 $\xi_g$  の 2 次の項は省略し、永年方程式を計算すると、

$$\xi_o \xi_g = \frac{1}{4} K^2 P^2 \chi_g \chi_{\bar{g}} \quad (3.23)$$

ここで簡単のため、

$$\Lambda = \frac{2\pi \cos \theta_B}{K|P||\chi_g|} = \frac{\lambda \cos \theta_B}{|P||\chi_g|} \quad (3.24)$$

とおくと、

$$\xi_o \xi_g = \frac{\pi^2 \cos^2 \theta_B}{\Lambda^2} \quad (3.25)$$

となる。図 3.1 のように  $x, y$  をとると、

$$\begin{aligned} \xi_o &= -x \sin \theta_B + y \cos \theta_B \\ \xi_g &= x \sin \theta_B + y \cos \theta_B \end{aligned} \quad (3.26)$$

これは、

$$-x^2 \sin^2 \theta_B + y^2 \cos^2 \theta_B = \frac{\pi^2 \cos^2 \theta_B}{\Lambda^2} \quad (3.27)$$

となり、双曲線となることがわかる。最近接距離は  $\frac{2\pi}{\Lambda} = \frac{K|P||\chi_g|}{\cos \theta_B}$  である。

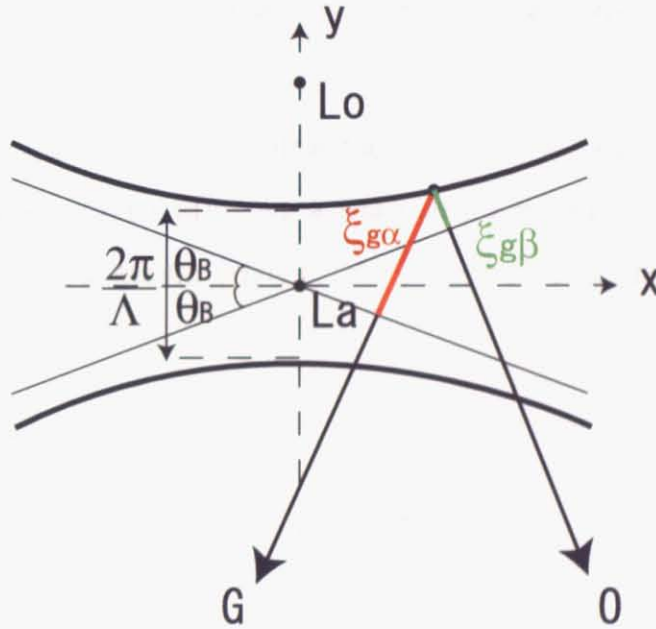


図 3.1: 分散面とブロッホ波

### 3.2.3 分散面と境界条件

分散面で規定される条件は必要条件であり、実際に存在を許される波は境界条件 (3.18) も同時に満たす必要がある。式 (3.18) の意味は、ブロッホ波の波数ベクトルから境界面の法線に伸びた足の長さが等しいということである。すなわち境界面の法線と分散面の双曲線が交わる場合のみ、ブロッホ波の条件が満たされる。

### 3.3 ブラッグケースとラウエケース

動力的回折は、境界面とブラッグ面の幾何学的関係により、ブラッグの場合とラウエの場合に分けることができる(図 3.2)。

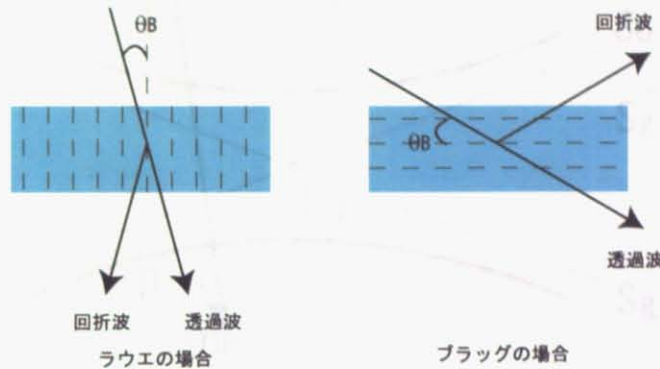


図 3.2: ラウエの場合 (左) とブラッグの場合 (右)

すなわち、

- 入射波と反射波が入射表面に対して同じ方向にある場合 (ブラッグケース)
- 入射波と反射波が入射表面に対して反対方向にある場合 (ラウエケース)

である。従う基本方程式は同じであるにもかかわらず、ブラッグとラウエには回折現象が大きく異なる。

#### 3.3.1 ラウエケース

ラウエケースでは、波動場は次のように書ける。

入射波:

$$E_e(\mathbf{r}) = E_e \exp[i(\mathbf{K}_e \cdot \mathbf{r})] \quad (3.28)$$

結晶内の波:

$$d(\mathbf{r}) = \mathbf{d}_o \exp[i(\mathbf{k}_o \cdot \mathbf{r})] + \mathbf{d}_g \exp[i(\mathbf{k}_g \cdot \mathbf{r})] \quad (3.29)$$

結晶中のブロッホ波の波数ベクトルは、図 3.3 の作図により得られる。まず、真空中の O 波と G 波の分散面  $\overline{S}_o$ 、 $\overline{S}_g$  を考える。それらは逆格子点 O 波および G を中心とする半径 K の球の一部であり、図では破線で示してある。回折面内で、両分散面の交点を  $L_o$  で表し、ローレンツ点と呼ぶ。回折の問題ではブラッグ条件近傍の狭い領域を問題にするので、 $\overline{S}_o$ 、 $\overline{S}_g$  は点  $L_o$  における球の接平面と考えてよい。運動学的理論では、入射波の分散点 E が点  $L_o$  と一致しているとき、入射波はブラッグ条件を厳密に満たしていると考えた。したがって、E と  $L_o$  の距離

$$s_o = K(\theta - \theta_B) \quad (3.30)$$

はブラッグ条件からのはずれを表すパラメーターである。境界条件により、結晶波の分散点 D は点 E を通る  $\mathbf{n}_e$  方向の直線と分散面の交点で与えられる。結晶波の分散面が双曲面であることから、ラウエの場合、 $\alpha$  ブランチと  $\beta$  ブランチの両方のブロッホ波が発生する。

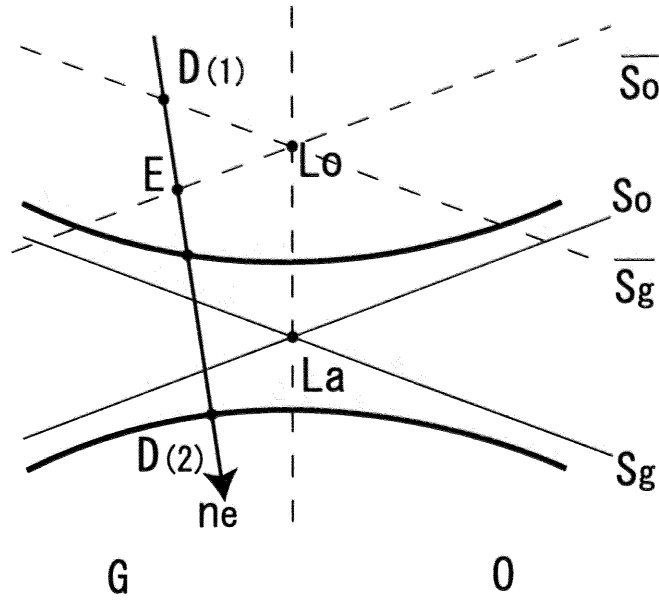


図 3.3: ラウエの場合の境界条件と分散面

振幅について考える。境界条件から、O 波と G 波が満たすべき振幅は以下のようなになる。

$$E_e \exp[i(\mathbf{K}_e \cdot \mathbf{r}_e)] = d_o^{(1)} \exp[i(\mathbf{k}_o^{(1)} \cdot \mathbf{r}_e)] + d_o^{(2)} \exp[i(\mathbf{k}_o^{(2)} \cdot \mathbf{r}_e)] \quad (3.31)$$

$$0 = d_g^{(1)} \exp[i(\mathbf{k}_g^{(1)} \cdot \mathbf{r}_e)] + d_g^{(2)} \exp[i(\mathbf{k}_g^{(2)} \cdot \mathbf{r}_e)] \quad (3.32)$$

ただし、 $\mathbf{r}_e$  は表面の位置ベクトルを表す。また、添え字 (1) は  $\alpha$  ブランチを表し、(2) は  $\beta$  ブランチを表す。回折波と透過波には、

$$\mathbf{k}_g = \mathbf{k}_o + 2\pi\mathbf{G} \quad (3.33)$$

の関係があるから、比例定数  $c^{(j)} d_o^{(j)} = d_g^{(j)}$  を用いれば、

$$d_o^{(j)} = C_o^j E_e \exp[i(\mathbf{K}_e - \mathbf{k}_o^{(j)}) \cdot \mathbf{r}_e] \quad (3.34)$$

$$d_g^{(j)} = C_g^j E_e \exp[i(\mathbf{K}_e - \mathbf{k}_o^{(j)}) \cdot \mathbf{r}_e] \quad (3.35)$$

となる。ここで、 $C_o^{(j)}, C_g^{(j)}$  はそれぞれ、

$$C_o^{(1)} = c^{(2)} / (c^{(2)} - c^{(1)}) \quad (3.36)$$

$$C_o^{(2)} = -c^{(1)} / (c^{(2)} - c^{(1)}) \quad (3.37)$$

$$C_g^{(1)} = c^{(1)} (c^{(2)} / c^{(2)} - c^{(1)}) \quad (3.38)$$

$$C_g^{(2)} = -c^{(1)} (c^{(2)} / c^{(2)} - c^{(1)}) \quad (3.39)$$

であり、振幅の透過係数と反射係数に対応する。結局、結晶中の波は、

$$d_o^{(j)} = C_o^j E_e \exp i[(\mathbf{K}_e \cdot \mathbf{r}_e) + (\mathbf{k}_o^{(j)} \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}_e))] \quad (3.40)$$

$$d_g^{(j)} = C_g^j \exp[2\pi i(\mathbf{g} \cdot \mathbf{r}_e)] E_e \exp i[(\mathbf{K}_e \cdot \mathbf{r}_e) + (\mathbf{k}_g^{(j)} \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}_e))] \quad (3.41)$$

となる。さらに分かりやすい形にするために、移相因子の中を  $\mathbf{r}$  の形に書き換える。

$$d_o^{(j)} = C_o^j E_e \exp(-i\delta^{(j)} t_e) \exp i[(\mathbf{K}_e \cdot \mathbf{r})] \quad (3.42)$$

$$d_g^{(j)} = C_g^j E_e \exp(-i\delta^{(j)} t_e) \exp i[(\mathbf{K}_e + 2\pi\mathbf{G}) \cdot \mathbf{r}] \quad (3.43)$$

ただし、

$$\mathbf{K}_e - \mathbf{k}_o^{(j)} = \delta^{(j)} \mathbf{n}_e \quad (3.44)$$

$$((\mathbf{r} - \mathbf{r}_e) \cdot \mathbf{n}_e) = t_c \quad (3.45)$$

である。波は、結晶中で深さが深くなるにつれて位相に変調を受けることが分かる。この変調は、 $\alpha$  ブランチと  $\beta$  ブランチの波とで移相量が異なるので、両者の波が互いに干渉して、ペンデル縞と呼ばれる縞をつくる。ペンデル縞の厚さ方向の縞間隔は、

$$\Lambda_P = 2\pi/(\delta^{(2)} - \delta^{(1)}) = 2\pi/((\mathbf{k}_o^{(1)} - \mathbf{k}_o^{(2)}) \cdot \mathbf{n}_e) \quad (3.46)$$

$$= 2\pi/((\mathbf{k}_g^{(1)} - \mathbf{k}_g^{(2)}) \cdot \mathbf{n}_e) \quad (3.47)$$

であり、透過波、回折波ともに等間隔の波が期待される。

### 複屈折

動力学的回折理論においては、式 (3.22) を見れば明らかなように、分散面は偏光によって形状が異なる。先ほど述べたように、結晶中を進む波は位相に変調を受けながら伝播するが、分散面が異なれば、変調の受け方も異なるため、 $\sigma$  偏光と  $\pi$  偏光でいわゆる複屈折が生ずる。期待される  $\sigma$  偏光と  $\pi$  偏光の位相差は、序論でも述べたとおり

$$\delta = -\frac{\pi}{2} \left[ \frac{r_e^2 \Re(F_h F_{\bar{h}}) \lambda^3 \sin(2\theta_B)}{\pi^2 V^2 \Delta\theta} l \right] \quad (3.48)$$

で与えられる [7]。透過型 X 線移相子は、この原理を用い、透過波を変調させている。

### 3.3.2 ブラッグケース

ブラッグケースでは、以下の 3 つの波を考える必要がある。

入射波:

$$E_e(\mathbf{r}) = E_e \exp[i(\mathbf{K}_e \cdot \mathbf{r})] \quad (3.49)$$

結晶波:

$$d(\mathbf{r}) = d_o \exp[i(\mathbf{k}_o \cdot \mathbf{r})] + d_g \exp[i(\mathbf{k}_g \cdot \mathbf{r})] \quad (3.50)$$

回折波:

$$E_g(\mathbf{r}) = E_g \exp[i(\mathbf{K}_g \cdot \mathbf{r})] \quad (3.51)$$

境界条件を考えると、ブロッホ波は以下のケースに分類される (図 3.4 参照)。

- (1) 分散点が逆格子ベクトル側にある場合
- (2) 分散点が存在しない場合
- (3) 分散点が逆格子ベクトル側の反対側にある場合

(1)、(3) の場合、分散点は、同じブランチ上に二つ存在することが分かる。しかし、後述する波の光線方向を考えると片方は結晶内部に向かう波であり、他方はその逆である。したがって、後者は入射の面から発生する波として採用できない。結局、一つの波だけが残る。この、残るほうの波を  $q$  とラベル付けする。

振幅について考える。境界条件から、O 波と G 波が満たすべき振幅は以下のようなになる。

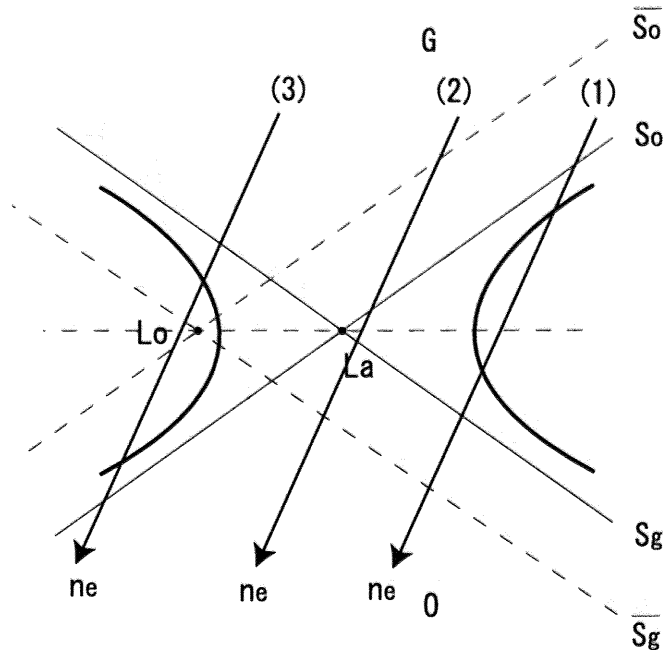


図 3.4: ブラッグの場合の境界条件と分散面

$$E_e \exp[i(\mathbf{K}_e \cdot \mathbf{r}_e)] = d_o^{(q)} \exp[i(\mathbf{k}_o^{(q)} \cdot \mathbf{r}_e)] \quad (3.52)$$

$$E_g \exp[i(\mathbf{K}_e \cdot \mathbf{r}_e)] = d_g^{(q)} \exp[i(\mathbf{k}_g^{(q)} \cdot \mathbf{r}_e)] \quad (3.53)$$

位相項を組み替え、回折波を書き表せば

$$E_g(\mathbf{r}) = c^{(q)} E_e \exp(i\delta_R H) \exp[i((\mathbf{K}_e + 2\pi\mathbf{g}) \cdot \mathbf{r})] \quad (3.54)$$

ただし、 $(\mathbf{K}_e + 2\pi\mathbf{g}) - \mathbf{K}_g = \delta_R \mathbf{n}_e$ 、 $H = ((\mathbf{r}_e - \mathbf{r}) \cdot \mathbf{n}_e)$ 。

### 3.3.3 結晶中でのエネルギーの流れ

先ほどまでの議論は、結晶中での波動場の振る舞いを考えたが、我々が実際に観測するのはエネルギーの流れである。その表式をポインティングベクトルを計算すればよい。この方向を、 $\nu$  を書き、以後光線方向と呼ぶ。たとえば、通常の一様な媒質にできるような平面波では光線方向と波数ベクトルの方向は一致する。結晶中のできるブロッホ波のエネルギーの流れは、一般に

$$\mathbf{s}_B = (c/8\pi) \exp[-2(\mathbf{k}'' \cdot \mathbf{r})] \sum_g \hat{\mathbf{k}}'_g (d_g d_g^*) \quad (3.55)$$

で与えられる。いま、二波近似の場合を考えると、

$$\mathbf{s}_B = (c/8\pi) \exp[-2(\mathbf{k}'' \cdot \mathbf{r})] \{ \hat{\mathbf{k}}'_o (d_o d_o^*) + \hat{\mathbf{k}}'_g (d_g d_g^*) \} \quad (3.56)$$

$\nu$  は、 $\mathbf{k}_o$  と  $\mathbf{k}_g$  の中間の方向をとる。一般的に、光線方向  $\nu$  は分散面に垂直な方向をとる。



### 3.4 球面波理論

先の議論では入射する X 線が平面波として議論したが、実際の X 線は発散角  $\Omega_m$  をもつ。平面波としてみなせるのは、回折線の角度幅  $\Delta\theta$  に対し、 $\Omega_m \ll \Delta\theta$  でなければならない。通常、この条件は満たされず、ビームは球面波として取り扱わなければならない。入射 X 線を十分に細くしぼり、しかも十分な角度発散を持つときには、X 線エネルギーは結晶中で  $s_o$  と  $s_g$  の方向の間に広がって進む。この三角形の領域はボルマンファン (Bormann fan) あるいは波の扇とよばれる。入射 X 線強度の角度分布が一様なとき、結晶内の X 線エネルギーの流れベクトルの分布密度は図 3.5 からわかるようにボルマンファンの中心付近 ( $W \approx 0$ ) で疎で、両端近くで密である。この中心付近では数秒の角度発散の入射 X 線が結晶中で数 10 度に広がり、線束の発散角の拡大率は  $10^5$  倍に及ぶ。

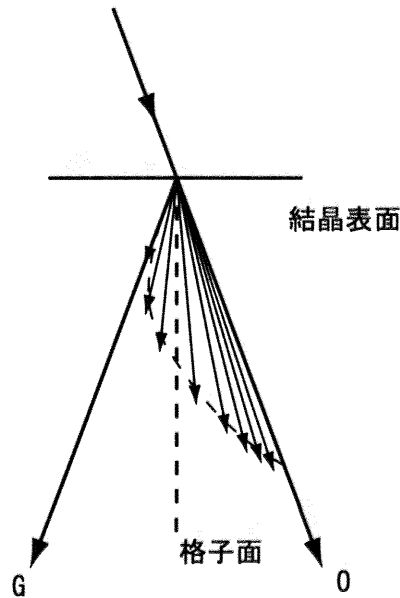


図 3.5: ボルマンファン内での流れベクトルの分布密度

ボルマンファン内でペンデル縞をつくる強度分布に注目すると、平面波入射の場合と異なる。同じ  $W$  の値 ( $W \neq 0$ ) に対する 2 つのプロッホ波はそのエネルギーの流れの方向が異なるが、平面波入射ではビームの幅が広いので干渉する。しかし球面波入射ではビームの幅が狭いので、空間的に重ならず干渉を起こさないが、分散面上の共役な分散点  $P_i$  と  $\bar{P}_i$  はエネルギーの流れの方向  $\nu$  が同じ方向なので干渉しうなりあいを生ずる。この場合のペンデル縞の周期は

$$\frac{2\pi}{(\mathbf{k}_g(P_i) - \mathbf{k}_g(\bar{P}_i)) \cdot \nu_i} \quad (3.57)$$

である。

### 3.5 乱れた結晶での理論

歪んだ結晶に対しては X 線ビームが結晶中を曲がりながら進むのを記述する波動理論がある。ここでは、ビーム理論を考える。

### 3.5.1 アイコナール理論

結晶内の歪みが十分に小さい場合、局所的には完全結晶とみなして扱う。局所的波動場は局所的逆格子ベクトルと局所的波数ベクトルを用いて完全結晶に対する動力学理論により表わされる。僅かな歪みがあると回折条件は場所的には変わる。それにしたがって O 波と G 波との振幅費が変わり、両波からなるブロッホ波の光路は広がることなく曲がりながら進む。その事情は、回折条件が変わるために分散点が分散面上を移動し、それに応じて X 線のエネルギー流の方向が変わるとして理解できる。(ペニング (P. Penning) とポルダー (D. Polder) の理論)。

さらにそれを発展させて、光学で屈折率が場所的にゆるやかに変わっている場合に曲がって進む光線の記述に用いられるアイコナール関数の概念が導入されている。その理論 (加藤の理論) の概略をつぎに述べる。

歪んだ結晶内の点  $\mathbf{r}$  は完全結晶内の点  $\mathbf{r}_p$  から変異ベクトル  $\mathbf{u}(\mathbf{r}_p)$  だけずれている。 $\mathbf{u}(\mathbf{r}_p)$  はほぼ  $\mathbf{u}(\mathbf{r})$  に等しいとして次のようにおく。

$$\mathbf{r} = \mathbf{r}_p + \mathbf{u}(\mathbf{r}) \quad (3.58)$$

完全結晶中で格子面とその逆格子ベクトル  $\mathbf{g}_p$  はつぎのように表される。

$$G_p \equiv \mathbf{r}_p \cdot \mathbf{g}_p = m \quad (3.59)$$

$$\mathbf{g}_p = \text{grad}_{\mathbf{r}_p} G_p \quad (3.60)$$

歪んだ結晶ではそれらに対応して、格子面とその局所的逆格子ベクトル  $\mathbf{g}(\mathbf{r})$  は

$$G_p \equiv \{\mathbf{r} - \mathbf{u}(\mathbf{r})\} \cdot \mathbf{g}_p = m \quad (3.61)$$

$$\mathbf{g}_p = \text{grad}_{\mathbf{r}} G = \mathbf{g}_p - \text{grad}_{\mathbf{r}} \{\mathbf{g}_p \cdot \mathbf{u}(\mathbf{r})\} \quad (3.62)$$

のような形になる。

点  $\mathbf{r}$  における電気感受率  $\chi$  の値は、歪みのないときにその点が位置していた点  $\mathbf{r}_p$   $\{\mathbf{r} - \mathbf{u}(\mathbf{r})\}$  における完全結晶での値  $\chi_p$  (そのフーリエ成分を  $\chi_p$  とする) と同じであると考え。すなわち

$$\chi(\mathbf{r}) = \chi_p \{\mathbf{r} - \mathbf{u}(\mathbf{r})\} = \sum_g \chi_g \exp\{iG(\mathbf{r})\} \quad (3.63)$$

動力学的回折理論の基礎方程式の解を

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_o \exp\{iS_o(\mathbf{r})\} + \mathbf{E}_g \exp\{iS_g(\mathbf{r})\} \quad (3.64)$$

のように振幅と位相に変化を持たせた形に表す。これは変形されたブロッホ波とよばれる。 $S_o(\mathbf{r})$  と  $S_g(\mathbf{r})$  を光学からの類推でアイコナールとよぶ。これらには

$$S_g(\mathbf{r}) = S_o(\mathbf{r}) + G(\mathbf{r}) \quad (3.65)$$

の関係をもたせる。そうすると局所的な波数ベクトルが

$$\mathbf{k}_o(\mathbf{r}) = \text{grad} S_o(\mathbf{r}), \quad \mathbf{k}_g(\mathbf{r}) = \text{grad} S_g(\mathbf{r}) \quad (3.66)$$

のように定義される。結晶内の点 P から Q に波が進むとき、

$$S_o = \int_P^Q \mathbf{k}_o(\mathbf{r}) \cdot d\mathbf{r}, \quad S_g = \int_P^Q \mathbf{k}_g(\mathbf{r}) \cdot d\mathbf{r} \quad (3.67)$$

のような位相積分を考える。フェルマーの原理に相当してこれが極地を持つ場合が光線の軌道であることが示されている。すなわち光線の軌道は変分原理により

$$\delta S_o = 0 \text{ あるいは } \delta S_g = 0 \quad (3.68)$$

で与えられる。この方法に従い、対称ラウエケースにおける光線軌道は

$$\pm \frac{d}{dz} \left( \frac{p}{\sqrt{1-p^2}} \right) = \frac{\Lambda}{\cos^2 \theta_B} \frac{\partial^2}{\partial s_o \partial s_g} (\mathbf{g}_p \cdot \mathbf{u}(\mathbf{r})) \quad (3.69)$$

のように求められる。ここで図 3.6 のように斜交座標系をとっており、 $\frac{\partial}{\partial s_o} = \mathbf{s}_o \cdot \text{grad}$ 、 $\frac{\partial}{\partial s_g} = \mathbf{s}_g \cdot \text{grad}$  であり、 $\mathbf{s}_o$  と  $\mathbf{s}_g$  はそれぞれ透過方向と回折方向の単位ベクトルである。± の符号はそれぞれブロッホ波  $\alpha$  と  $\beta$  に対応する。また

$$p = \frac{\tan \Theta}{\tan \theta_B} = \frac{1}{\tan \theta_B} \frac{dx}{dz}, \quad \frac{p}{\sqrt{1-p^2}} = W \quad (3.70)$$

とおいている。

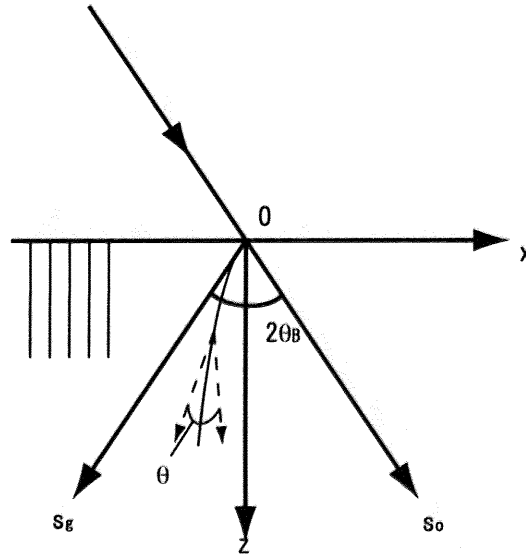


図 3.6: 光線軌道を決めるための斜交座標

(3.69) は歪みの勾配が一定の場合には容易に解ける。(3.69) の右边を一定値  $U$  とおき、入射点  $x = z = 0$  で  $W = W_o$  として積分すると、

$$\left( \frac{Ux}{\tan \theta_B} \pm \sqrt{1 + W_o^2} \right)^2 - (Uz - W_o)^2 = 1 \quad (3.71)$$

が得られる。光線の軌道はこの双曲線の一部になる。各ブロッホ波は双曲線の  $U$  の符号に依存したブランチの 1 つに対応する。図 3.7 は  $U > 0$  および  $u < 0$  の場合の例である。ブロッホ波  $\alpha$  の光線の軌跡は格子面の曲がりと同じ向きに曲がり、ブロッホ波  $\beta$  は逆向きになる。また軌道の曲率半径は格子面のその  $10^4$  倍くらい大きい。出射面上での各ブロッホ波に対応する強度は、そこでのエネルギー流の方向が回折方向に近ければ回折波の方が増し、逆に透過方向に近ければ透過波の方が増す。これらの現象は一定の温度勾配をつけた結晶で観測されている。

ビーム理論では結晶内で光線の形を保つ必要があり、ペンデル縞のの周期くらい離れた 2 点で歪みの大きさが格子面間隔に比べて十分に小さいような弱い歪みの場合に対して適用できる。

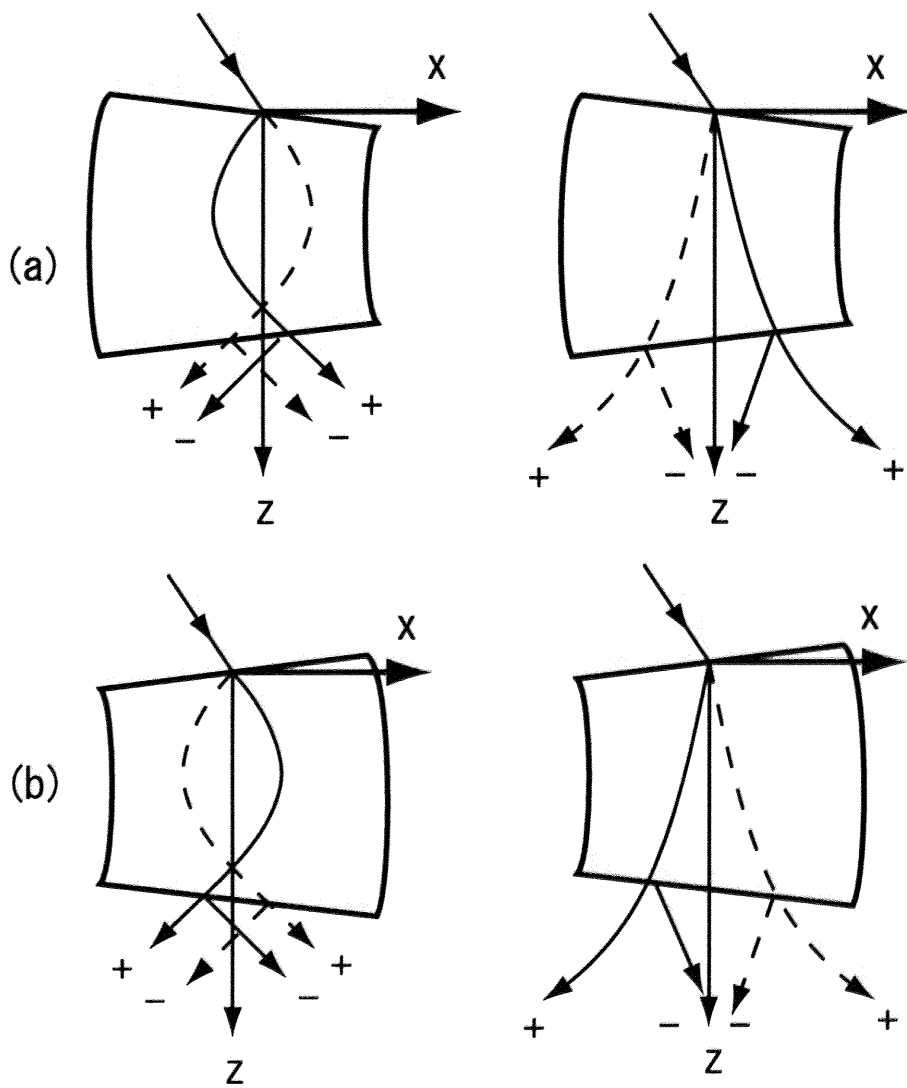


図 3.7: 一様なゆがみ勾配をもつ結晶中での光線軌道 (プロッホ波  $\alpha$ : 実線、プロッホ波  $\beta$ : 点線) 歪み勾配は (a)  $U > 0$  (b)  $U < 0$ 。入射条件  $W_1 < W_{11}$ 。出射強度 + : 増加、- : 減少

### 3.5.2 波動理論

ゆがんだ結晶における電気感受率  $\chi(\mathbf{r})$  は前と同様に (3.63) を用いる。結晶中の波動場  $\mathbf{E}(\mathbf{r})$  はつぎのように振幅変調を受けた形にする。

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_o(\mathbf{r}) \exp(i\mathbf{k}_o \cdot \mathbf{r}) + \mathbf{E}_g(\mathbf{r}) \exp(i\mathbf{k}_g \cdot \mathbf{r}) \quad (3.72)$$

ここで  $\mathbf{E}_o(\mathbf{r})$  と  $\mathbf{E}_g(\mathbf{r})$  はゆっくり変化する関数である。これらを (3.8) に代入し、2 次の微少量を無視すればつぎのような  $E_o$  と  $E_g$  に関する連立偏微分方程式が得られ、高木-トウパンの式とよばれる。

$$\begin{cases} \frac{\partial}{\partial s_o} E_o = \frac{1}{2} K \chi_o'' E_o - \frac{i}{2} K P \chi_g E_g \\ \frac{\partial}{\partial s_g} E_g = -\frac{i}{2} K \chi_g E_o - (i K P \beta_g' + \frac{1}{2} K \chi_o'') E_g \end{cases} \quad (3.73)$$

ここで前と同様に  $s_o$ 、 $s_g$  の斜交座標を用い、 $\frac{\partial}{\partial s_o}$  と  $\frac{\partial}{\partial s_g}$  を扱っているが、これは電子回折の場合のコラム近似において  $\theta_B$  が小さいので深さ方向  $\mathbf{z}$  に注目し、 $\frac{\partial}{\partial z}$  だけが問題にされるのと対照的である。 $\beta_g'$  は局所的なブラッグ条件からのずれを表す量で、対称反射の場合、

$$\beta_g' = -P |\chi_g'| W - \frac{1}{K} \frac{\partial}{\partial s_g} \mathbf{g} \cdot \mathbf{u}(\mathbf{r}) \quad (3.74)$$

であり、第1項と第2項はそれぞれ入射条件と、歪み場の寄与である。

波動理論は強く歪んだ領域にも適用でき、ビーム理論よりも適用範囲が広い。強く歪んだ領域で例えば分散面の  $\alpha$  ブランチ上の分散点に属する波が  $\beta$  ブランチ上の分散点も励起する現象 (interbranch scattering) が起こり、厚い結晶中でも両方のブランチの波動場が共存する状態が作られる。このような現象も計算に取り込まれるが、波動理論では分散面の概念を用いていないので、それが生じていることはコンピューターシミュレーションの結果から読み取ることになる。

## 第4章 ベリー位相とビームシフト

近年になって、歪みのある結晶中での X 線の伝播について、別のアプローチから記述する理論が示された [14]。ある中心端数  $k_c$  をもち、分散が少ない (単色性が高い) 波束に対して、実空間でのベリー位相という位相を導入し、波束のシフトを導くのが以下に述べる理論である。ベリー位相とは、拘束条件中での波動現象一般に現れるものであり、これを導入することにより拘束条件下での波動現象についての見通しが明らかになる。例えば、アハラノフボーム効果、光ホール効果などはこの概念を用いることにより自然に説明できる [19]。

### 4.1 ベリー位相について

ベリー位相についての一般論を述べる。以下の議論は、概念について概説したものであり、必ずしも正確な表現をしていない可能性があることを注記しておく。ベリー位相について詳しく述べた文献は、ベリーの原論文 [12] あるいは参考文献 [13, 20] などを参照されたい。ベリー位相とは、系のハミルトニアンがもつ外部変数を断熱的に変化させたとき波動関数に生じる幾何学的な位相のことを指す。

まず、時間  $t$  に依存する何らかのパラメーター  $\mathbf{p}$  によって定義された波動関数  $\Psi(\mathbf{p}(t))$  を考え、パラメーターをゆっくりと (=断熱的に) 変化させる場合を考える。シュレディンガー方程式

$$\hat{H}\Psi(\mathbf{p}) = E\Psi(\mathbf{p}) \quad (4.1)$$

を満たす固有値、固有関数をそれぞれ  $E_n$ 、 $n(\mathbf{p})$  とする。  $t = 0$  におけるパラメーター空間上の点を  $Q$  とする。断熱的にゆっくりとパラメーター  $\mathbf{p}$  を変化させたとき、時間  $t$  後の  $Q'$  点における波動関数は以下のように表せる。

$$\Psi(t) = \exp\left\{\frac{-i}{\hbar} \int_0^t dt' E_n(\mathbf{p}(t'))\right\} \exp(i\gamma_n(t)) n(\mathbf{p}(t)) \quad (4.2)$$

ここで、時間に関する積分の因子は自明な、波動関数の時間発展の寄与である。今、われわれが着目すべきは余剰の  $\gamma(t)$  による位相変化であり、ベリー位相とよばれるものである。

ベリー位相の変化の大きさは、式 (4.2) を線積分してやればよく、

$$\gamma_n(C) = i \int_C \langle n(\mathbf{p}) | \nabla_{\mathbf{p}} n(\mathbf{p}) \rangle \cdot d\mathbf{p} \quad (4.3)$$

で与えられる。断熱的にループ  $C$  上でパラメーターを変化させ、元の点  $Q$  にもどした場合を考えると、パラメーター  $\mathbf{p}$  が同一であっても、ベリー位相の変化分だけ波動関数が変わっていることになる。この変化分が、干渉の変化や、偏光状態の変化、光の波束のシフトを引き起こす。逆に言えば、これらの現象はベリー位相を用いて統一的に議論ができ、「位相の変化」という数学的に分かりやすい形で説明をつけることができる。

式 (4.3) において、 $\langle n(R) | \nabla_{\mathbf{p}} n(R) \rangle$  は数学的には接続とよばれ、いわゆる「ベクトルポテンシャル」とよばれるものに対応する。この接続の rot をとったものを、一般的に「磁場」とよぶことにする。次節では、周期性のある系において定義される、磁場に対応した量として「ベリー曲率」という量を用いて議論をすすめる。このベリー曲率は、数学的にベリー位相の概念を導入してはじめてでてくるものである。

## 4.2 動力学的回折理論と波束のベリ一曲率

以下の文章は参考文献 [14, 21] を参照したものである。

出発点は、動力学的理論によって X 線の状態をブロッホ状態として解いた後で、ブロッホ波を出発点として新しく幾何光学を構築しようというのがここでの目的である。

### 4.2.1 波束の解析力学

結晶中では誘電率  $\epsilon(\mathbf{r})$  が周期性をもち、Fourier 変換して

$$\epsilon(\mathbf{r}) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} \zeta_n e^{i\mathbf{G}_n \cdot \mathbf{r}} \quad (4.4)$$

とあらわせる。X 線の場合には 2 波近似がよく成り立つため、1 つの逆格子ベクトルに着目して

$$\epsilon(\mathbf{r}) = \zeta_0 + \zeta_1 e^{i\mathbf{G} \cdot \mathbf{r}} + \zeta_{-1} e^{-i\mathbf{G} \cdot \mathbf{r}} \quad (4.5)$$

としてよい。このような場合に電磁場の波動方程式を解くと、

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} u_{\mathbf{k}}^E(\mathbf{r}) \quad (4.6)$$

$$\mathbf{H}(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} u_{\mathbf{k}}^H(\mathbf{r}) \quad (4.7)$$

の形にかける。ただし、 $u_{\mathbf{k}}^{E,H}(\mathbf{r} + \mathbf{a}) = u_{\mathbf{k}}^{E,H}(\mathbf{r})$  は結晶と同じ周期性を持つベクトルである。

ここで、数学的な都合により方程式をエルミートにするために、電磁場を

$$\mathbf{\Gamma}(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} \sqrt{\epsilon(\mathbf{r})} \mathbf{E}(\mathbf{r}) \\ \sqrt{\mu(\mathbf{r})} \mathbf{H}(\mathbf{r}) \end{pmatrix} \quad (4.8)$$

として 6 次元ベクトルで議論する。この  $\mathbf{\Gamma}$  はブロッホ関数として、 $\mathbf{\Gamma}(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} \mathbf{U}_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})$  と表せる。

そこで、このブロッホ波を重ね合わせることで波束を構成し、波束の運動方程式を作る。波束  $W$  は、 $\mathbf{\Gamma}$  を重ね合わせて

$$W(\mathbf{k}_c, \mathbf{r}_c, t) = \int \frac{d\mathbf{k}}{(2\pi)^2} \omega(\mathbf{k}, \mathbf{k}_c, t) \mathbf{\Gamma}_{n\mathbf{k}z_c}(\mathbf{r}_c) \quad (4.9)$$

と書ける。ただし、 $\mathbf{k}_c, \mathbf{r}_c$  はそれぞれ波数・位置の重心であり、 $z_c$  は偏光状態を表す。このとき、波束のダイナミクスを記述する有効ラグランジュアンは、

$$L(\mathbf{r}_c, \dot{\mathbf{r}}_c, \mathbf{k}_c, \dot{\mathbf{k}}_c, z_c, \dot{z}_c) = \langle W | i \frac{d}{dt} - \omega | W \rangle \quad (4.10)$$

から求まる。波束は実空間と波数空間の両方に有限の分布を持っているため、全微分が  $\frac{d}{dt} = \frac{\partial}{\partial t} + \dot{\mathbf{r}}_c \cdot \nabla_{\mathbf{r}_c} + \dot{\mathbf{k}}_c \cdot \nabla_{\mathbf{k}_c}$  とかけることに注意すると、有効ラグランジュアンは

$$L(\mathbf{r}_c, \dot{\mathbf{r}}_c, \mathbf{k}_c, \dot{\mathbf{k}}_c, z_c, \dot{z}_c) = -\omega_n + \mathbf{k}_c \cdot \dot{\mathbf{r}}_c + i \langle \tilde{U}_{z_c} | \partial_t \tilde{U}_{z_c} \rangle + i \dot{\mathbf{r}}_c \cdot \langle \tilde{U}_{z_c} | \nabla_{\mathbf{r}_c} | \tilde{U}_{z_c} \rangle + i \dot{\mathbf{k}}_c \cdot \langle \tilde{U}_{z_c} | \nabla_{\mathbf{k}_c} | \tilde{U}_{z_c} \rangle \quad (4.11)$$

と書ける。この有効ラグランジュアンから Euler-Lagrange 方程式を立てることで、次のような運動方程式が得られる。

$$\dot{\mathbf{r}}_c = \frac{\partial \omega_n}{\partial \mathbf{k}_c} - \Omega_{\mathbf{k}\mathbf{k}} \cdot \dot{\mathbf{k}}_c - \Omega_{\mathbf{k}\mathbf{r}} \cdot \dot{\mathbf{r}}_c + \Omega_{t\mathbf{k}} \quad (4.12)$$

$$\dot{\mathbf{k}}_c = -\frac{\partial \omega_n}{\partial \mathbf{r}_c} - \Omega_{\mathbf{r}\mathbf{r}} \cdot \dot{\mathbf{r}}_c - \Omega_{\mathbf{r}\mathbf{k}} \cdot \dot{\mathbf{k}}_c + \Omega_{t\mathbf{r}} \quad (4.13)$$

ただし、 $\Omega$  と書かれた 6 角量は「ベリー曲率」と呼ばれるもので、実効的な磁場に対応し、例えば  $\Omega_{r_\alpha, k_\beta} \equiv \langle \partial_{r_\alpha} \tilde{U}_{z_c} | i \partial_{k_\beta} \tilde{U}_{z_c} \rangle - \langle \partial_{k_\beta} \tilde{U}_{z_c} | i \partial_{r_\alpha} \tilde{U}_{z_c} \rangle$  と与えられる。

このようなベリー曲率は、ブロッホ関数の周期部分から定義されていることが示すように、周期性のある系で初めて生じるものであって、動力学回折理論ならではのものである。

## 運動方程式の導出について

ここで、理解を深めるためにベリー位相の概念について単純化して考えてみる。簡単のために、 $m = e = 1$  とする。

古典力学では、磁場下での家電粒子の運動量として観測可能なのは正準運動量  $\pi = \mathbf{p} - \mathbf{A}_r$  であり、 $\mathbf{p}$  自身は  $\mathbf{A}_r$  の選べ方 (ゲージ) に依存するため観測できない。自由粒子の Hamiltonian を磁場下の Hamiltonian に書き換えるには一般に、 $\mathbf{p} \rightarrow \pi = \mathbf{p} - \mathbf{A}_r$  とすればよく、運動方程式は

$$\begin{aligned} \ddot{\mathbf{r}} &= -\frac{\partial E}{\partial \mathbf{r}} + \dot{\mathbf{r}} \times \nabla_{\mathbf{r}} \times \mathbf{A}_r \\ &= -\frac{\partial E}{\partial \mathbf{r}} + \dot{\mathbf{r}} \times \mathbf{B}_{rr} \end{aligned} \quad (4.14)$$

となり、2 項目にローレンツ力が現れる。ここで、 $\mathbf{B}_{rr}$  はいわゆる磁場である。左辺を

$$\dot{\mathbf{k}} = -\frac{\partial E}{\partial \mathbf{r}} + \dot{\mathbf{r}} \times \mathbf{B}_{rr} \quad (4.15)$$

と書き換える。つまり、磁場が存在するときは運動量にベクトルポテンシャル  $\mathbf{A}_r$  の補正が加わり、 $\mathbf{k}_c$  の方程式にローレンツ力が出てくる。

それでは、「磁場の存在」のような補正が、運動量に関してだけでなく、位置に対してもあらわれないか、というのがこの理論のアイデアである。波束は実空間にも運動量空間にも分布を持つため、波束を記述する物理は  $\mathbf{r}_c$  と  $\mathbf{k}_c$  が対等であると期待される。そこで、先ほどの磁場中の運動量の方程式においてあらわれた正準運動量とのアナロジーで、「正準位置」 $\mathbf{R} = \mathbf{r} - \mathbf{A}_k$

$$\dot{\mathbf{R}} = \frac{\partial E}{\partial \mathbf{k}} - \dot{\mathbf{k}} \times \nabla_{\mathbf{k}} \times \mathbf{A}_k \quad (4.16)$$

これが意味するところは、「(逆) 磁場のベクトルポテンシャル」が存在すれば、波束の中心位置  $R$  の運動が、群速度  $\mathbf{v}_g = \frac{\partial E}{\partial \mathbf{k}}$  からずれて運動する、ということである。

ここで、磁場を、「ベクトルポテンシャルの rot をとったもの」と、定義を拡張すると、 $\mathbf{A}_r$  と  $\mathbf{A}_k$  に対して、 $\nabla_k$  と  $\nabla_r$  の組み合わせが考えられ、

$$\dot{\mathbf{R}} = \frac{\partial E}{\partial \pi} - \dot{\pi} \times \mathbf{B}_{kk} - \dot{\mathbf{R}} \times \mathbf{B}_{kr} \quad (4.17)$$

$$\dot{\pi} = -\frac{\partial E}{\partial \mathbf{R}} - \dot{\mathbf{R}} \times \mathbf{B}_{rr} - \dot{\pi} \times \mathbf{B}_{rk} \quad (4.18)$$

となる。

本研究の場合、「磁場」に対応するのは動力学理論によるブロッホ関数をもたらす周期性である。ここからの議論は、波束の重心のベリー曲率による補正であり、

$$\mathbf{r}_c = \mathbf{v}_g - \Omega_{kr} \cdot \dot{\mathbf{r}}_c \quad (4.19)$$

の  $\Omega_{kr}$  の効果を考察する。ここで、 $\Omega_{kr}$  は、波数空間における周期性、実空間における結晶歪みのつながりを表している。



## 4.2.2 ベリー曲率の影響による波束シフト

得られた運動方程式を解くことで、波束の重心に関するシフトが導かれる。 $\mathbf{r}_c$ に関する運動方程式を積分する。ある $\alpha$ 成分に対して、

$$r_{c\alpha} - r_{0\alpha} = v_{g\alpha}t - \int (\Omega_{\mathbf{k}\mathbf{r}}) \quad (4.20)$$

$$= v_{g\alpha}t + \frac{\partial A_{r\beta}}{\partial k_{c\alpha}} \quad (4.21)$$

$$= v_{g\alpha} + \frac{\partial \mathbf{A}_r}{\partial k_{c\alpha}} \cdot [\mathbf{u}(\mathbf{r}_c) - \mathbf{u}(\mathbf{r}_0)] \quad (4.22)$$

となる。ここで、 $v_g = \frac{\partial \omega}{\partial \mathbf{k}}$  は群速度、 $\mathbf{r}_0$  は  $t=0$  における  $\mathbf{r}_c$  である。ブラッグ条件近傍では、

$$\frac{\partial A_{r\beta}}{\partial k_{c\alpha}} \Big|_{|\mathbf{k}| \simeq |\mathbf{k}-\mathbf{G}|} \simeq \pm \frac{1}{2} \frac{G_\alpha G_\beta}{|\mathbf{k}|^2} \frac{\omega}{\Delta\omega} \quad (4.23)$$

となる。結局、

$$\mathbf{r}_c - \mathbf{r}_0 \simeq \mathbf{v}_g t \pm \mathbf{G} \{ \mathbf{G} \cdot (\mathbf{u}(\mathbf{r}_c) - \mathbf{u}(\mathbf{r}_0)) \} \frac{\omega}{2\Delta\omega} \frac{1}{|\mathbf{k}|^2} = \mathbf{v}_g t \pm \mathbf{G} \{ \mathbf{G} \cdot (\mathbf{u}(\mathbf{r}_c) - \mathbf{u}(\mathbf{r}_0)) \} \frac{\omega}{2\Delta\omega} \frac{1}{|\mathbf{k}|^2} \frac{k}{2\Delta k} \quad (4.24)$$

これが、重心の位置シフトを与える式である。

この式から、位置シフトは、散乱ベクトルに平行であること、歪みベクトルの差分に比例すること、ブラッグ条件近傍にて大きな値をもつこと ( $\frac{\omega}{2\Delta\omega}$  あるいは  $\frac{k}{2\Delta k}$  のファクターによって enhance される) がわかる。

ブラッグ条件から少し外れた場合のシフトを、偏光状態について場合わけして書くと、

$\sigma$  偏光の場合、

$$\mathbf{r}_c - \mathbf{r}_0 \simeq \mathbf{v}_g t \pm \mathbf{G} \{ \mathbf{G} \cdot (\mathbf{u}(\mathbf{r}_c) - \mathbf{u}(\mathbf{r}_0)) \} \frac{\zeta_0}{|\zeta_1|} \frac{1}{2|\mathbf{k}|^2} \left[ \mp + \frac{\zeta_0}{2|\zeta_1|} \frac{\Delta k^{(2)}}{|\mathbf{k}|^2} \right] \quad (4.25)$$

$\pi$  偏光の場合、

$$\mathbf{r}_c - \mathbf{r}_0 \simeq \mathbf{v}_g t \pm \mathbf{G} \{ \mathbf{G} \cdot (\mathbf{u}(\mathbf{r}_c) - \mathbf{u}(\mathbf{r}_0)) \} \frac{\zeta_0}{|\zeta_1|} \frac{1}{2|\mathbf{k} \cdot (\mathbf{k} - \mathbf{G})|^2} \left[ \pm + \frac{\zeta_0}{2|\zeta_1|} \frac{\Delta k^{(2)}}{|\mathbf{k} \cdot (\mathbf{k} - \mathbf{G})|^2} \right] \quad (4.26)$$

となる。

## 第5章 検出器の原理

測定に使用する検出器は様々なものがあるが、それぞれの特徴を把握し、適切なものを選ぶことは実験上とても重要である。また、取り扱い上の注意点もそれぞれ違うため、どのような原理で測定が行われているのかをしっかりと理解しておかなければならない。この章では、実験に使用した3種類の検出器(イオンチェンバー、シンチレーションカウンタ、CCD型X線検出器)の簡単な原理について、参考文献 [23] に準拠しながら述べる。

### 5.1 イオンチェンバー

イオンチェンバーは電離箱ともいい、光子、荷電粒子による気体の電離作用を利用する検出器である。簡単な構造で耐久性もあり、安価なのでX線の検出器としては広く用いられている [22]。

2つの電極を、窒素やアルゴンなどの気体を満たした箱の中で向かい合わせ、高電圧をかける。X線が箱の中に入り、気体が電離されると、その生成イオンは電圧によって電極に集められる。電極では生成したイオン対に比例した電気的変化が生じ、放射線が失ったエネルギーと生成イオン対数との比例関係から放射線の強度、線量、エネルギーなどが測定できる。

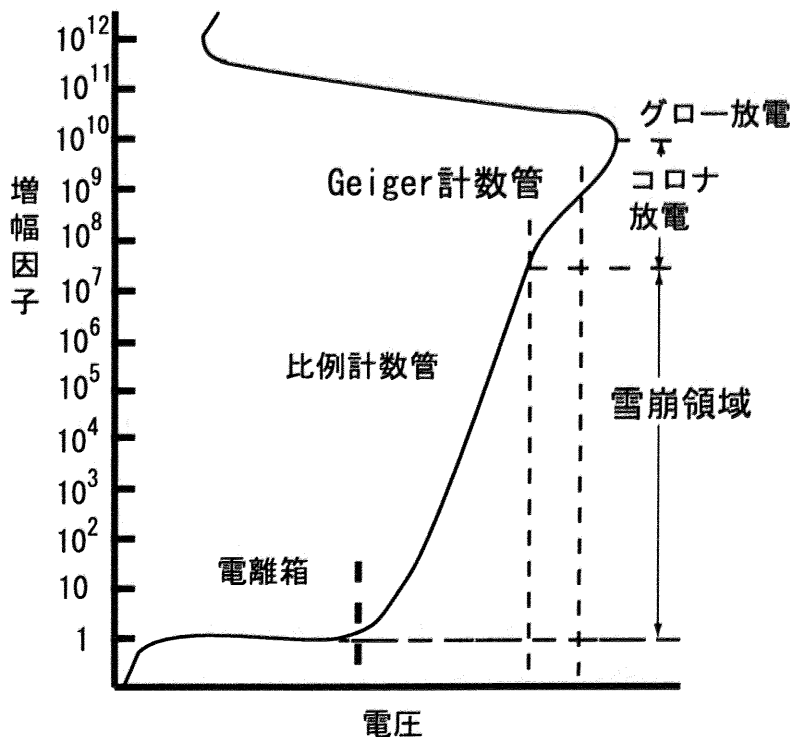


図 5.1: 気体増幅率に及ぼす電圧の影響 [23]

このとき、電極間にかかる電圧の値に注意する必要がある。もし、1000 V を大きく上回る高い電圧が電極間

にかけられていた場合、X線の光子によって電離された電子は、陽極急速に加速される。加速は陽極に近づくほど大きくなり、ついに電子は気体から電子をたたき出すほどの大きなエネルギーを得て、順次気体を電離してゆく。電子によってたたき出された2次電子も同じように他の電子をたたき出し、増幅される。このようにして1個の電子は電子なだれによって $10^3 \sim 10^5$ 倍にまで増幅され、検出が容易になる。これは比例計数管とよばれるものの原理であるが、電離箱はこの増幅作用を利用しない領域を利用する。ただし、低すぎる電圧で利用してしまうと、いったん電離した対が再び結合して中性の原子に戻ってしまい、数え落としが生じる。図5.1は電圧と増幅因子をグラフに示したものである。電離箱は左端の方の平坦な場所を利用することになる。今回、われわれの実験では電離箱として利用するために1080 Vで用いた。

装置内の気体ガスの種類の選択は重要である。重い元素を利用すれば、それほどX線を吸収しやすくなるので計数効率は良くなるが、再結合しやすいので数え落としが生ずる可能性がある。

## 5.2 シンチレーションカウンター

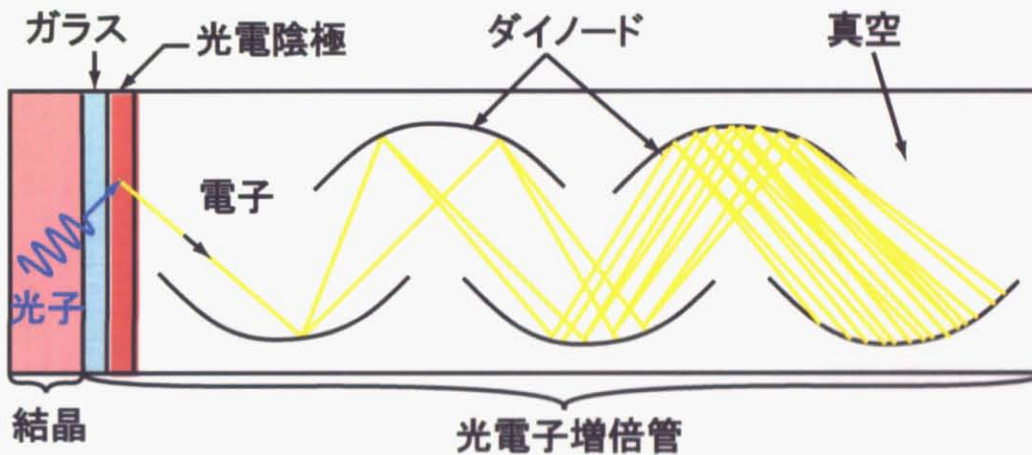


図 5.2: シンチレーションカウンター [23]

シンチレーションとは閃光を意味し、シンチレーションカウンターとは文字通り光電子を増幅して検出する計数管のことである。図5.2はシンチレーションカウンターの簡略化した図である。

シンチレーションカウンターに使われる物質は、少量のタリウムで活性化されたヨウ化ナトリウム NaI である。X線がこれに当たると、NaIは電子が励起されイオン化する。基底状態に戻るときにNaIの電子は余分なエネルギーを青い光として放出する(すなわち蛍光のことである)。この蛍光は、図5.2の光電陰極(セシウム-アンチモン金属化合物からできた感光物質)にたたきつけられ、多くの光電子を生じる。次に光電子はダイノードに到達するが、このダイノードは順次100 Vずつ高く保たれており、電子を増幅する機能をもつ。ダイノードに到着した光電子は、たとえば第1のダイノードで5倍になり、さらに第2のダイノードで5倍というように増幅される。もし10枚ダイノードがあるとすれば、1個の光電子は $5^{10} \approx 10^7$ 個に増えることになる。1個のX線の光子の吸収により、最終的にはボルトオーダーの大きな信号になる。

これらの過程は100万分の1秒以下で完了するため、 $10^5$ の高い計数率で利用可能である。図5.3にシンチレーションカウンターをはじめとする種々の計数管の計数効率のグラフを示す。シンチレーションカウンターで検出されたパルスの大きさは、吸収した光子のエネルギーに比例する。しかしそれほどエネルギー分解能はよいとはいえず、異なる波長のX線を識別することはむずかしい。分光計の用途としては、エネルギー分解能にすぐれるSSD(Solid State Ditector)が優れている。

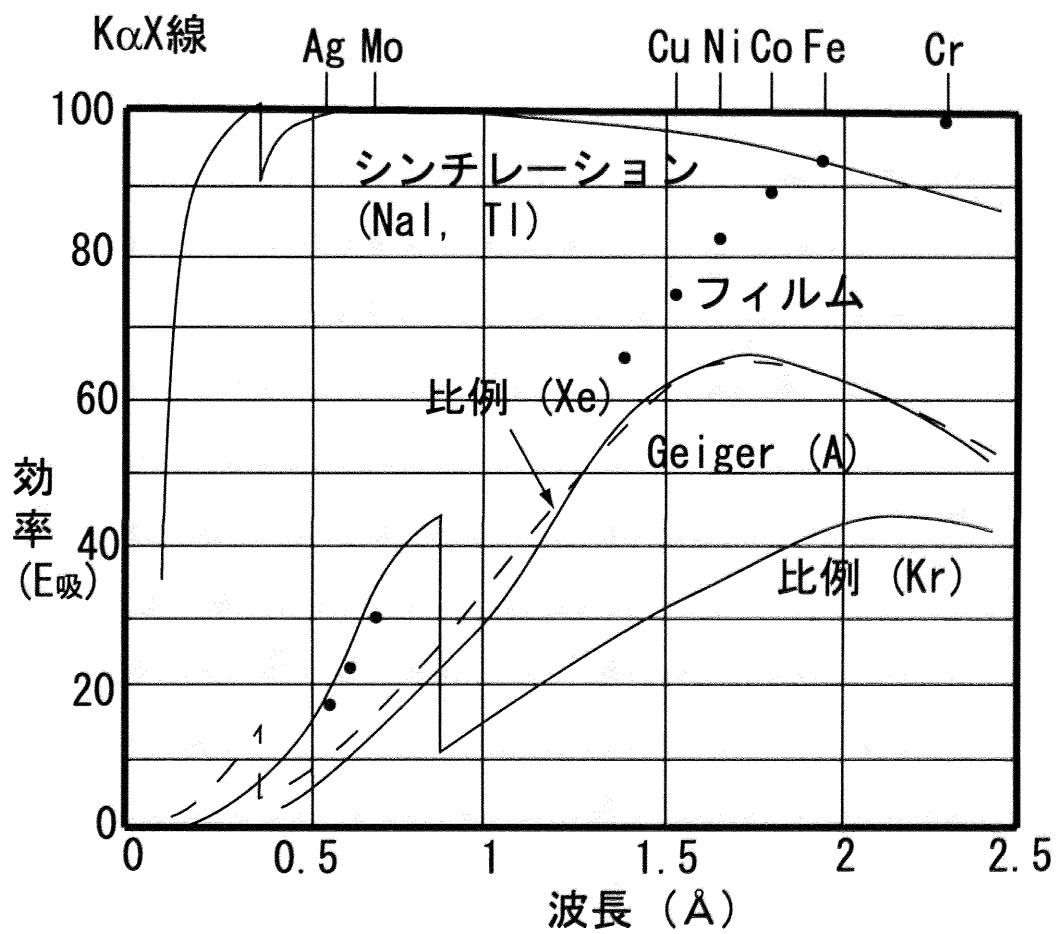


図 5.3: 種々の計数管の吸収効率の計算値 [23]

### 5.3 CCD 型 X 線検出器

CCD とは Charge-Coupled Device の略語である。日常的にも、ビデオカメラなどでなじみのある検出器である。もともと可視光用であるが、X 線にも感度を持つ。また、蛍光体を用いて可視光に変換した上で検出する手法もよく用いられる。

構造は、シリコンなどの半導体基盤表面に薄い絶縁膜をつけ、その上に電極をのせた MOS 構造である。10 V 程度の電圧を印加し、空乏層を形成する。空乏層内では、電子に対してポテンシャルの井戸になっている。空乏層に格子が入ると、光電効果により空乏層にトラップされる。同様の電極が 2 次元的に基盤目状に並べられている。一つの電極がある領域が、読み取り可能な最小サイズの領域であり、ピクセルとよばれる。ピクセルのサイズは数  $\mu\text{m}$  から数 10  $\mu\text{m}$  の大きさである (本実験においては縦横各 6.7  $\mu\text{m}$ )。トラップされた電子は、印加電圧をピクセル順に変化させることによって読み出し回路に電流として流れ、最終的には電圧に変換されてフォトン数の情報になる。このようなプロセスを経て読み出されるため、一回毎の測定の時間分解能は悪い (近年では高速な読み出しのものも存在する)。また、熱励起により光電子ではない電子がトラップされてしまうのを防ぐため、通常はペルチェ素子などを用いて -50 C° 程度に冷却されている。

## 第6章 実験装置

### 6.1 ユニバーサル X 線エリプソメーター

われわれが用いたユニバーサル X 線エリプソメーターを図 6.1 に示す。

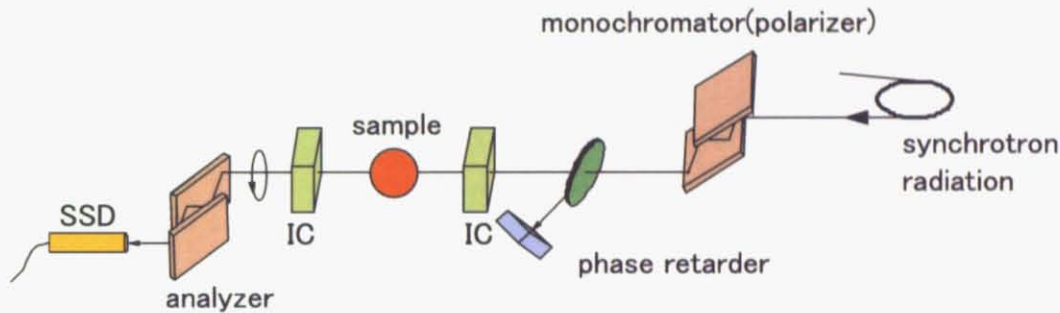


図 6.1: ユニバーサル X 線エリプソメーター

ユニバーサル X 線エリプソメーターの特長は、その可搬性、自由度であり、あらゆるビームラインにて実験を行うことができる上、偏光子、移相子、検光子、検出器などを自由に組み合わせて実験を行うことができる??。この特長を活かし、ビームシフトについて様々な実験を行った。

### 6.2 各実験装置について

#### 6.2.1 スリット

スリット  $S_1$  は偏光子の上流に設置されており、入射した白色 X 線のビームサイズを決定する役割を担う。

$S_2$  は偏光子の直後に設置されており、ダイレクトビームや偏光子で生じた目的の反射以外をそぎ落とす役割を担う。ビームを切らないように、 $S_1$  スリットよりもやや大きめに開ける。とくに、上下方向についてはブラッグ角が変化するとビーム位置が変化するので、その分を考慮して絞る必要がある。横方向は左右それぞれ 0.5 mm だけ余裕をもって絞った。

$S_3$  は単色化したビームを、CCD 型 X 線検出器で検出しやすい大きさに絞る役割を担う。最終的なビームスポット・発散・エネルギー分散はここで決定される。CCD 型 X 線検出器を用いた実験では、最終的に  $0.3 \mu\text{m} \times 0.3 \mu\text{m}$  の大きさに絞った。

#### 6.2.2 チャンネルカット型偏光子 (モノクロメーター)

シンクロトロン放射光を単色化・直線偏光するために、シリコンの単結晶インゴットより切り出したチャンネルカット結晶を用いた。偏光度を高めるために、ブラッグ角を  $45^\circ$  付近で用いている。本実験では、Ni の K 吸収端 (8.333 keV) 測定を行なうため、ブラッグ角が  $45^\circ$  付近となるようにシリコンの (511) 面の偏光子を用いた。入

射中はハッチに入れないため、偏光子の角度は外から遠隔操作で変更することができるようになっている。ブラッグ角のまわりに、 $\pm 2^\circ$  程度の变化ができる。偏光子本体は小型のスイベル付きのゴニオメーターヘッドを介して、ゴニオメーターに取り付けられる。このスイベルで結晶の面内回転を調整し、グリッチを避けることができる。

入射する光は白色であるため、偏光子は発熱する。そのためチラーから冷却水を流す機構がついている。このチラーによって偏光子は  $20^\circ\text{C}$  に保たれている。

## 原理

ボンゼ (U. Bonse) とハート (M. Hart) は、Si の完全結晶に細い溝を切り、その中で複数回ブラッグ反射を行わせる素子を提案した [25]。これはわれわれが偏光子兼モノクロメーターとして用いたものである。図 6.2 のように一回反射の反射率  $R(\theta, \lambda)$  は最高点のまわりにすそを引いている。 $n$  回反射を行った後の強度分布は  $R^n$  であり、裾野の部分は複数回反射することにより中心部より小さくなる。これによって積分強度を著しく変えることなく強度分布を矩形的に整形できる。また、ブラッグ反射を用いているので、この結晶を通過したビームは、そのブラッグ角に対応する波長 (含む高調波) について単色化されている。

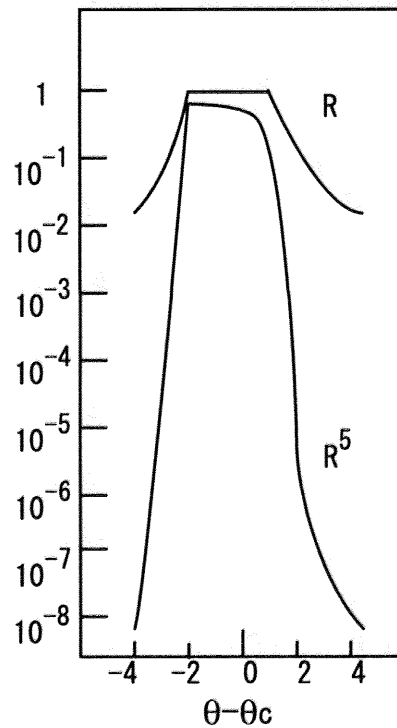


図 6.2: チャンネルカット結晶による反射曲線

ここで、さらに偏光について考える。全反射領域を代表するダーウィン幅  $W$  は、偏光状態に依存し、 $\pi$  偏光は  $\sigma$  偏光に対して  $1/|\cos 2\theta_B|$  だけ狭い。 $\theta_B = 45^\circ$  に近い場合、 $\pi$  偏光のダーウィン幅は非常に狭くなることがわかる。そこで、チャンネルカット結晶に意図的にオフセット角  $\Delta\theta$  をつけ、結晶面を非平行に配置する。反射波の強度は、ロッキングカーブとビームの強度分布のコンボリューションによって得られるが、オフセットをつけることにより、反射するたびにロッキングカーブがずれてゆく (1 回反射で  $2\Delta\theta$ 、3 回目ですらにそこから  $2\Delta\theta$ )。オフセットの程度を、 $\sigma$  偏光の半値幅より小さく、 $\pi$  偏光の半値幅に対して大きくとってやれば、反射するたびに  $\pi$  偏光が満たす回折条件から  $2\Delta\theta$  だけずれていくので、コンボリューションをとれば  $\pi$  偏光の成分だけが

きく削られる。これが偏光子の原理である。

### 6.2.3 透過型 X 線移相子

移相子に用いる結晶は直径約 5 mm の 8 角形のダイヤモンド単結晶である (住友電気工業製)。通常用いるブラッグ面は、高い電気感受率が好ましいため (111) 面であるが、非対称反射を利用してビームの利用可能な面積を大きくするために結晶表面は (100) 面になっている。厚さは 0.2 mm、0.3 mm、0.4 mm、2.6 mm のものをエネルギーに応じて使い分けている。高エネルギーになるほど、電気感受率が落ちるので、より結晶と相互作用させる必要があるため、厚みが必要になる。今回用いた結晶は 0.4 mm である。

### 6.2.4 イオンチェンバー

スリット通過前の強度をモニターするのが  $I_0$ 、スリット通過後の強度をモニターするのが  $I_t$  である。イオンチェンバーのビーム方向の長さは  $I_0$  で 4 cm、 $I_t$  で 8 cm である。イオンチェンバーからの信号 (電流) は、6.2.7 節で述べるアンプに送られる。

内部のガスは、予備実験のときはメインの検出器として用いるため、水蒸気の影響を排除するためドライ  $N_2$  を用いた。CCD 型 X 線検出器を用いた実験のときは入射ビームの相対強度を確認するためのサブとして用いるので、簡易的に空気を用いた。

詳しい原理などについては、5 章で解説する。

### 6.2.5 シンチレーションカウンター

シンチレーションカウンターは、スリットによる強度分布の直接観察を行う際に用いる。

### 6.2.6 CCD 型 X 線検出器

CCD 型 X 線検出器 (浜松フォトニクス製 C4880) は、CCD 型 X 線検出器による直接観察の実験で用いる。ピクセル数は 1280(Horizontal)×1024(Vertical)、各々のピクセルサイズは  $6.7 \times 6.7 \mu\text{m}^2$  である。光学レンズを用いて拡大することも可能である。今回実験には 5 倍の光学レンズを用い、ピクセルあたりの分解能は  $1.34 \times 1.34 \mu\text{m}^2$  となっている [26,27]。ただし、X 線を可視光に変換する際に蛍光体 (P43) を用いており、その点像分布関数 (PSF) は  $2 \sim 3 \mu\text{m}$  となる。

装置内部にはベルチェ素子を取り付けられており、 $-50 \text{ }^\circ\text{C}$  に冷却して熱励起による暗電流を抑制している。画像取り込みのソフトウェアには CCD 付属の Hipic(浜松フォトニクス) を用いた。

### 6.2.7 その他

#### アンプ

イオンチェンバーからの信号 (電流) はこのアンプ (Keithley428、427) に入り、電圧として V-F コンバーターに出力される。アンプのゲインは  $10^9 \text{ V/A}$  で用いた。



## V-F コンバーター

V-F コンバーター (応用光研製) は、アンプより受け取った電圧の信号を周波数に変換し、デジタルな値を出力する。イオンチェンバーの生データはこの周波数の値である。変換レートは 1 MHz/10 V、1 MHz/1 V、1 MHz/0.1 V があるが、今回の実験においては 1 MHz/10 V を用いた。

## 偏光子用ゴニオメーター

偏光子用ゴニオメーターは、ステッピングモーター駆動によるタンジェンシャルバー方式の  $\theta$  軸と、同じくタンジェンシャルバー方式の  $\chi$  軸の 2 軸精密ゴニオメーターである。材質はフレーム部はアルミ板、タンジェンシャルバーは鉄鑄造である。ゴニオメーターは脚が 3 箇所あり、上下 20 mm 範囲で高さ調整が可能である。ゴニオメーターの軸の 2 軸は、波長 (エネルギー) スキャン軸  $\theta_1$  と偏光測定軸  $\chi_1$  軸である。 $\theta_1$  軸の最小送り角は 0.02"/pulse、 $\chi_1$  軸の最小送り角は 0.81"/pulse である。

## 移相子用ゴニオメーター

移相子用ゴニオメーターは、ステッピングモーター駆動によるタンジェンシャルバー方式のゴニオメーターである。最小送り角は 0.09"/pulse である。X 線透過型移相子は小型のスイベルを介して、ゴニオメーターに取り付けられる。また、ビーム軸まわり ( $\chi$  軸) に回転可能であり、移相子に入射する偏光状態を変化させることができる。

## 6.3 シンクロトロン放射光

本実験はつくば市の高エネルギー加速器研究機構 (KEK) の Photon Factory (PF)、BL-8C で行なった。

PF では、X 線をシンクロトロン放射光から得ることができる。シンクロトロン放射光の特徴は、以下のとおりである。

- 高い輝度
- 赤外から X 線までにわたる連続スペクトル
- 高い指向性
- 偏光度の高い偏光性
- パルス性

われわれが行う実験において、高い輝度は、移相子を用いるときに十分な強度で利用するために必要であり、また連続スペクトルを持つことは、様々な波長で実験を行ううえで不可欠である。また、高い偏光性は言うまでもなく必要である。

### 6.3.1 放射光の発生原理

次に、シンクロトロン放射光の発生原理について簡単に述べる [17]。高速に近い速さで運動する電子や陽電子は、磁場などでその軌道を変えられると軌道の接線方向に強い電磁波を発する。これがシンクロトロン放射光である。

$v \ll c$ で運動している電子の場合、円運動する電子は加速度方向を軸とした双極子放射を行なう。電気双極子放射のパワーの角分布は $\sin^2$ 型であり、加速度方向への放射は0である。これが、相対論的な速さで動く電子の場合、静止した観測者から見た放射の角分布の形はローレンツ収縮で歪んで見える。非相対論的な場合に放射のパワーが0だった場所は、ローレンツ変換を行なうと軌道の接線方向の両側(6.3(b))  $\theta = \pm 1/\gamma$ の場所になる( $\gamma = \frac{E}{mc^2} = \frac{1}{\sqrt{1-\beta^2}}$ )。つまり、その角度内に放射のパワーが集まることになる。

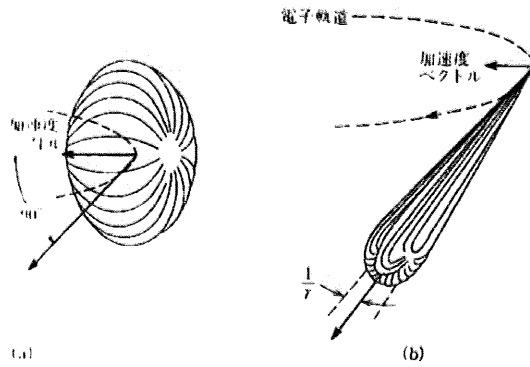


図 6.3: 円軌道を走る電子から放射される電磁波のパワーの角分布 [17]

### 偏光性

偏光特性については次のように考えることができる。電場ベクトルの方向は、加速度ベクトルの方向と一致す

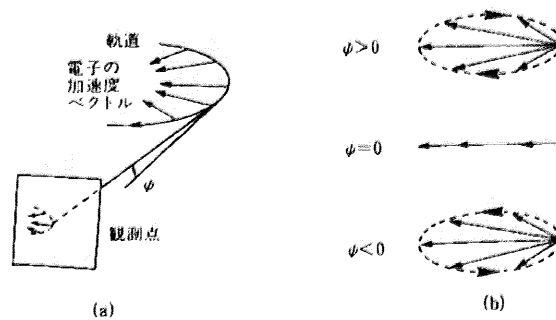


図 6.4: 放射光の偏光性 [17]

るので、軌道の接線方向の近くにいる観測者が図 6.4(a) の  $\psi = 0$  の位置にいた場合、加速度ベクトルは (b) の様に直線偏光になる。 $\psi > 0$  の場合、加速度ベクトルは (b) のように時間とともに時計回りに回転し、楕円偏光となる。 $\psi < 0$  の場合はそれと逆方向の楕円偏光を与える。初期の偏光解析では、このように光源を斜めから見ることによって楕円偏光を得ていた。

楕円偏光の生成の仕方としては、他にも電子の軌道を螺旋状にするヘリカルアンジュレーターを用いるなどの方法もある。

### 6.3.2 PFの放射光の特性

PFの放射光の特性は以下のとおりである 発散角は実験室のX線管に比べ十分小さく、直線偏光の偏光度も

表 6.1: PF2.5GeV リング

Beam energy	2.5 GeV (2.5 - 3.5 GeV)
Initial beam current	450 mA
Horizontal beam emittance (design value)	36 nm · rad
Vertical beam emittance (design value)	~ 0.4 nm · rad
Number of bending magnets	28
Number of rf accelerating cavities	4
rf frequency	500.1 MHz
Circumference	187 m
Number of insertion devices	6
Beam lifetime	50 h (at I=400 mA)
Average ring pressure	$6 \times 10^{-6}$ Pa(at I=400 mA)
Radiation loss per turn	400 keV
Stability of SR beam position	less than 20 $\mu$ m during the whole day
size of light source(BL-8C)	$\sigma_x$ 0.391 mm $\sigma_y$ 0.059 mm $\sigma_{x'}$ 0.185 mrad $\sigma_{y'}$ 0.0129 mrad
size of light source(BL-15B)	$\sigma_x$ 0.203 mm $\sigma_y$ 0.061 mm $\sigma_{x'}$ 0.245 mrad $\sigma_{y'}$ 0.0125 mrad

95% と高い。

## 第7章 実験

### 7.1 予備実験:スリットを用いた実験

移相子によるシフトの大まかな振る舞いを確認するために、予備実験として、スリットを用いてビーム位置変化を間接的に推定する実験を行った。実験は茨城県つくば市の高エネルギー加速器研究機構 (KEK)PF BL-8C2で行った。

実験配置は図 7.1 のようになる。

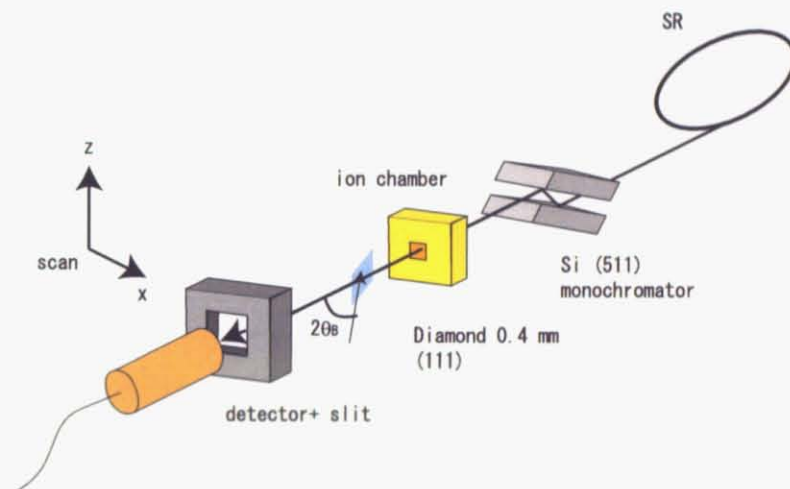


図 7.1: スリット実験の概観図

#### 7.1.1 スリットでの強度分布の直接観察

スリット部を、図 7.1 のようにモーターステージに取り付け、スリットを動かしてビームの強度分布を直接観察した。ビームは  $0.5 \text{ mm(H)} \times 1.0 \text{ mm(V)}$  の長方形であり、スキャンの方向は水平方向、垂直方向に行く。スリットはスキャン方向に約  $4 \mu\text{m}$  程度に絞っており (イオンチェンバーの値からの概算)、スキャンと直角な方向は全開にした。ステップは  $5 \mu\text{m}$  でスキャンした。この実験は、ナイフエッジで強度を微分したものと同一結果を与える。

透過波と移相子によって回折する波の幾何学的関係は図 7.2 のようになる。また、散乱ベクトルの方位角  $\chi$  を、図 7.2 のように定義する。この実験においては、移相子  $0.4 \text{ mm}$ 、 $\chi = -45^\circ$  (右下はね) の場合のみ行った。

ブラッグ角からのずれ角  $\Delta\theta$  は、水平偏光、円偏光、垂直偏光、それぞれ低角、高角がわについて行った。また、ダイレクトビームの強度分布も測定した。

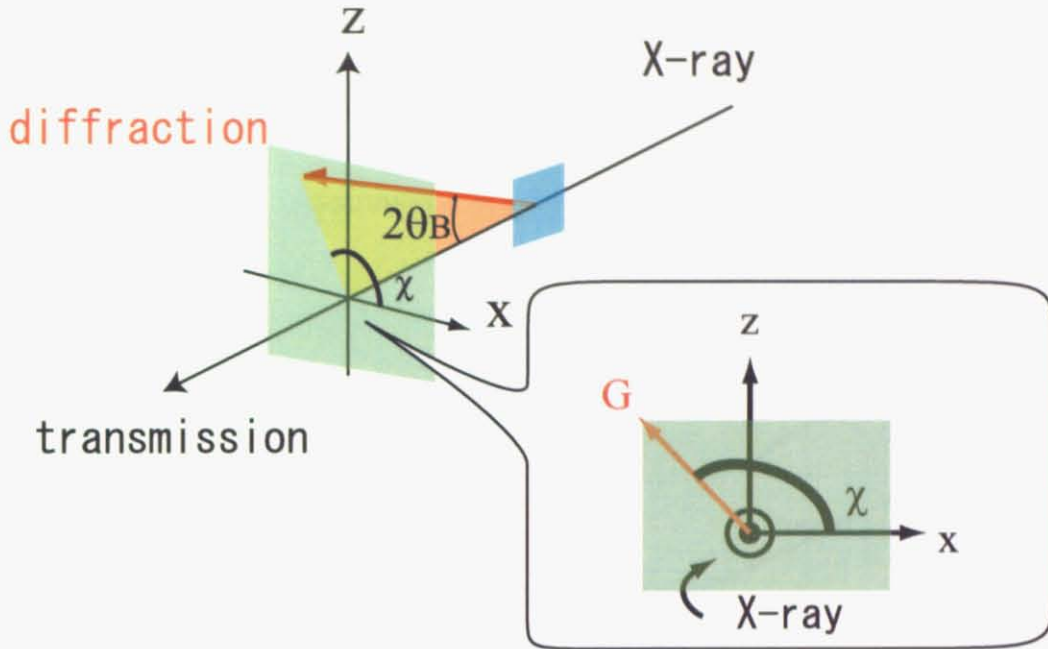


図 7.2: 移相子での透過波と回折波の幾何的關係

### 7.1.2 強度変化からのビーム位置推定

図 7.3 のように入射ビームの下半分もしくは上半分をスリットにてさえぎり、強度をシンチレーションカウンターでモニターする。たとえば下半分を切ったとき、ビームが上方方向にシフトすればシンチレーションカウンターに入る強度は増え、下方方向にシフトすればビームの強度は減少する。ビームの強度分布が分かっているならば、強度変化から垂直方向のシフトを見積もることができる。水平方向のシフトも同様にして、右半分もしくは左半分をさえぎることによって得ることができる。また、垂直方向、水平方向のシフトが分かれば、シフトした方位角 ( $\chi$ )、シフトの絶対値を知ることができる。

スリット走査して測定した強度分布を元にシフトを見積もる。このとき、強度分布のプロファイルは  $\Delta\theta$  がどの角度でも、ダイレクトビームのものと変化せず、平行シフトしていると仮定している。



図 7.3: スリットによる強度変化の見積もり

また、ダイヤモンド移相子を 2 枚用い、収差補償型配置で使用したときのビームシフトの様子も調べた。収差補償型配置とは、沖津らによって [28, 29] 開発された移相子システムである。透過移相子一枚のみを用いた場合には、収差によって偏光度が低くなってしまふ。それを防ぐために、下流にもう一枚同じ移相子を置き、反対方向の方位角  $-\chi$  に散乱させることにより収差を補償するものである。移相子 2 枚を用いた場合に、シフトがどの

ように影響するのかを観察した。

## 7.2 CCD型X線検出器による実験

移相子によるシフトを観察するために、CCD型X線検出器を用いて、ビーム位置変化を直接測定した。実験は茨城県つくば市の高エネルギー加速器研究機構(KEK)PF BL-15Bで行った。

### 7.2.1 実験配置

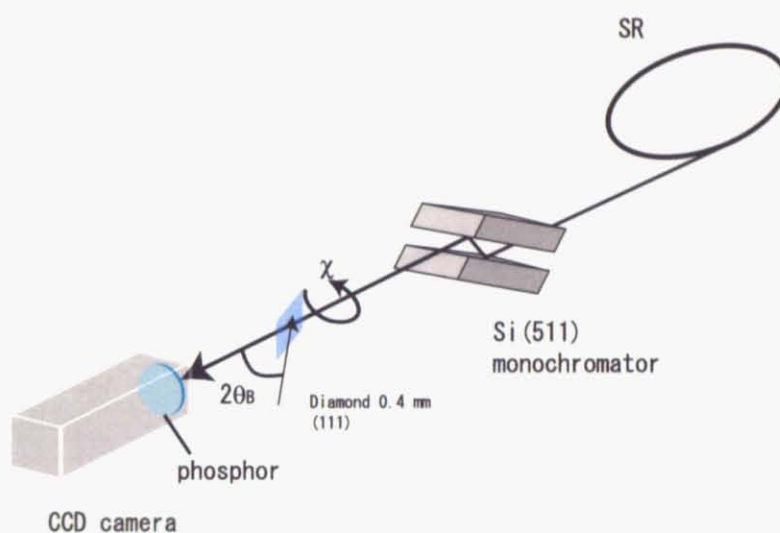


図 7.4: CCD型X線検出器を用いた実験の概観図

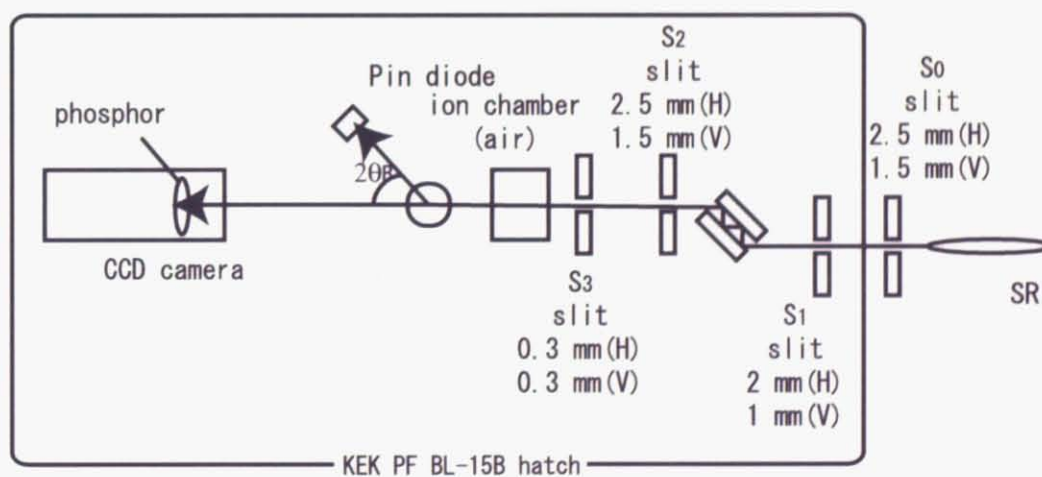


図 7.5: CCD型X線検出器を用いた実験における装置配置図

実験配置は図 7.4、7.5 のようになる。

まず、シンクロトロン放射光によって放射された白色ビームを、ハッチ内に入る前に上流の  $S_0$  スリットによって形状を整形する。これは、強度ができるだけ平坦になる場所で用いるためと、ハッチ内に入射する余分なビームを削り、散乱 X 線を軽減するためである。次に、偏光子に確実に当たるようにするため、 $S_1$  スリットによって  $2\text{ mm(H)} \times 1\text{ mm(V)}$  程度の大きさにさらに大きさを制限する。偏光子に入射した X 線は、Si(511) 面による 4 回反射で  $8.333\text{ keV}$  に単色化、水平偏光度を高められる。別の面の反射をそぎ落とすために、下流の  $S_2$  スリットを通す ( $S_2$  ではビームの形状は変わらない)。さらに、単色化したビームを欲しいサイズにするために  $S_3$  スリットで  $0.3\text{ mm} \times 0.3\text{ mm}$  程度に整形する。

整形したビームをダイヤモンド移相子に透過させ、CCD 型 X 線検出器を用いてビームの形状を観察する。

ダイヤモンド移相子は  $0.4\text{ mm}$  の結晶を用いる。X 線を (111) 面でブラッグ反射させ、ダイレクトビームより  $2\theta_B$  の方向にはねられた回折波を PIN ダイオードでモニターする。散乱ベクトルの方位角 (以下、はねる方向と表現する。図 7.2 参照) は、移相子ゴニオの  $\chi$  軸回転機能により自由な方向にはねることができる。通常、移相子として用いる状況では、 $\sigma$  偏光と  $\pi$  偏光が 1:1 の割合になるように  $\chi=45^\circ$  の方向に方位角をとるが、本実験ではその他の角度でも実験を行った。方位角と、偏光状態の関係を表 7.1 に示す。

表 7.1: 方位角  $\chi$  とそれに伴って変化する放射光の偏光状態。移相子と用いる場合では  $\chi = 45^\circ$  が普通である。

$\chi$ (deg)	-90	0	45	90
$\sigma$ 偏光	1	0	$1/\sqrt{2}$	1
$\pi$ 偏光	0	1	$1/\sqrt{2}$	0

## 7.2.2 カメラ長 400 mm、おもて面での実験

実験はある  $\chi$  にはねる方向を固定し、ブラッグ角からのずれ角  $\Delta\theta$  をブラッグ条件近傍で振って、ビーム形状の変化を観察する。なお、7.2.3 において結晶をゴニオヘッドのマウントに対して裏返して利用した実験を行っているため、区別をつけるために今の状態を「おもて面」と表記する。

$\Delta\theta$  の値として用いたのは、表 7.2 のとおりである。また、はねる方向  $\chi$  を変更して、同様の実験を行った。用いた  $\chi$  の値は、表 7.3 である ( $\chi$  の定義は図 7.2 参照)。

表 7.2: 測定した  $\Delta\theta$  の値

$\Delta\theta$ (arcsec)	-12	-8	-4	-2	0	4	6	8	12

表 7.3: 測定した  $\chi$  の値 (ビーム下流から見た場合)

$\chi$ (deg)	-90(真下)	0(右)	45(右上)	90(真上)

CCD 型 X 線検出器の露光時間はいずれの画像も  $3600\text{ s}$  で撮影している。また、移相子からのカメラ長は  $400\text{ mm}$  で固定する。時間変化によるダイレクトビームのずれを確認するために、 $\chi$  を変更して測定する前後に、移相子を抜いたダイレクトビームの画像を撮影する。

### 7.2.3 結晶裏面を用いた実験

移相子の場所ごとに異なる、歪みなどの影響を調べるために、別の (111) 面を用いて実験を行った。(111) は 3 回対称軸であるため、結晶中に等価な面が 3 つ存在することになるが、新たにマウントしなおす作業に時間がかかるため、最初に行った実験で用いた (111) 面の裏面を用いて実験を行った。カメラ長は 400 mm のまま変更せず、 $\chi$  は  $-90^\circ$  のみ行った。また、ビームタイムの都合上  $\Delta\theta = -12, -8, -4, -2, 0$  とジャストブラッグより低角側のみ実験を行った。

### 7.2.4 カメラ長 700 mm、おもて面を用いた実験

このシフトや形状変化が、X 線ビームの出射方向の変化によるものではないことを示すために、移相子からのカメラ長を 700 mm に変更して実験を行った。射出方向が変化することによりビーム位置が変化しているならば、カメラ長に比例してシフトが大きくなるはずである。

$\chi$  は  $-90, 0, 45, 90^\circ$  において行ったが、 $\Delta\theta$  はジャストブラッグのみ行った。



## 第8章 実験結果

スリットを用いた実験、CCD型X線検出器を用いた実験による結果を示す。

### 8.1 予備実験:スリットを用いた実験

予備実験の結果を示す。

#### 8.1.1 スリットでの強度分布の直接観察

散乱ベクトルの方位角  $\chi = 45^\circ$  のときの、スリットによってスキャンした水平方向、垂直方向のビームの強度分布を図8.1、8.2に示す。

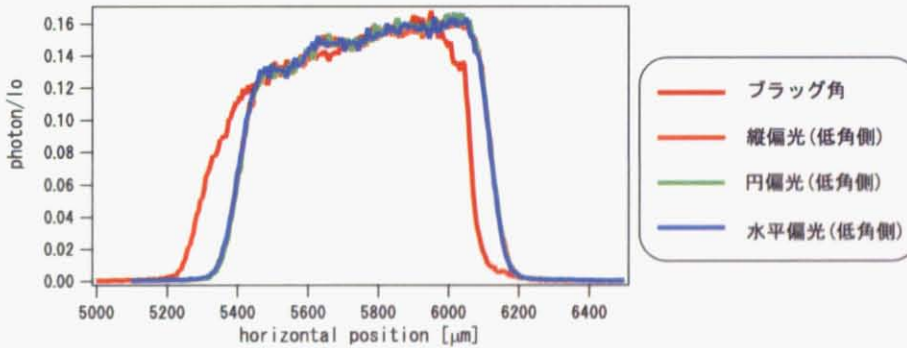


図 8.1: 水平方向のビームの強度分布。赤: $\Delta\theta = 0''$ (ブラッグ条件)、橙: $\Delta\theta = -25''$ (円偏光)、緑: $\Delta\theta = 0''$ (縦偏光)、青:低角側水平偏光

円偏光、縦偏光ではあまり変化していないが、ジャストブラッグのとき、大きくビームのエッジがシフトしていることが分かる。また、強度の分布も変化している。

#### 8.1.2 強度変化からのビーム位置推定

ダイレクトビームの強度分布を元にビームシフトを見積もったグラフを示す。左軸赤線はシフトの絶対値、右軸青線はシフトの方位角である。それぞれ、下方向へのシフトと左方向へのシフトから、2乗和と、 $\arccos$ をとることによって求めた。

また、厚さ 0.4 mm の移相子を、収差補償型で用いた場合の結果を同様に示す。

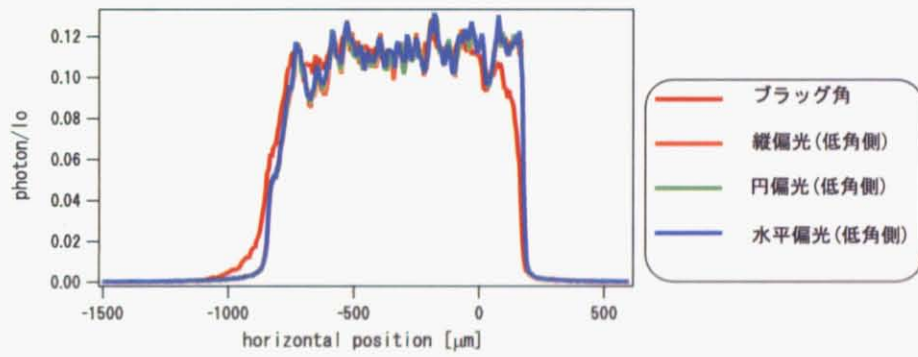


図 8.2: 垂直方向のビームの強度分布。赤: $\Delta\theta = 0''$ (ブラッグ条件)、橙: $\Delta\theta = -25''$ (円偏光)、緑: $\Delta\theta = 0''$ (縦偏光)、青:低角側水平偏光

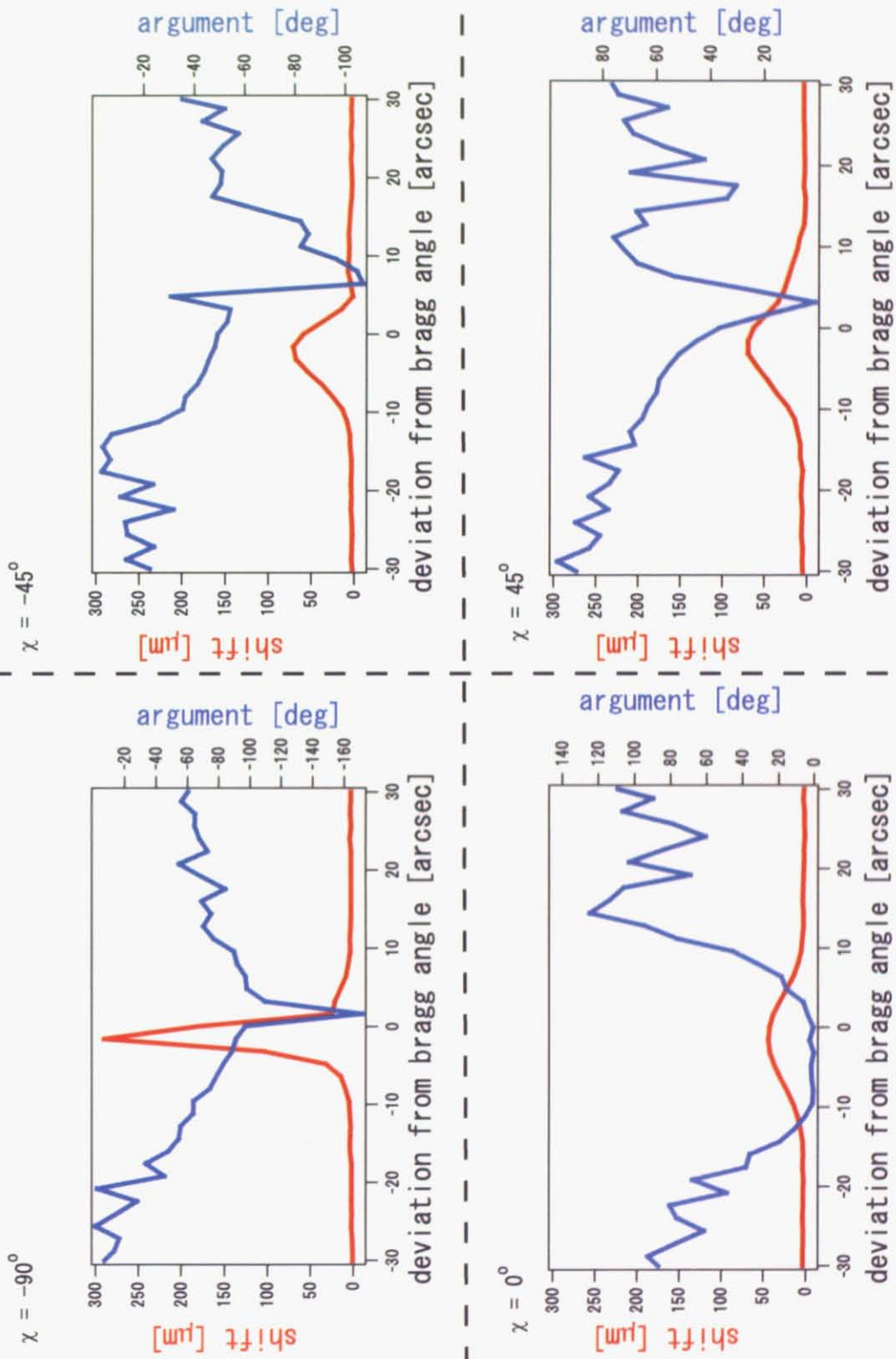


図 8.3: 強度変化より見積もったビームシフト。赤:シフトの絶対値、青:シフトの方位角

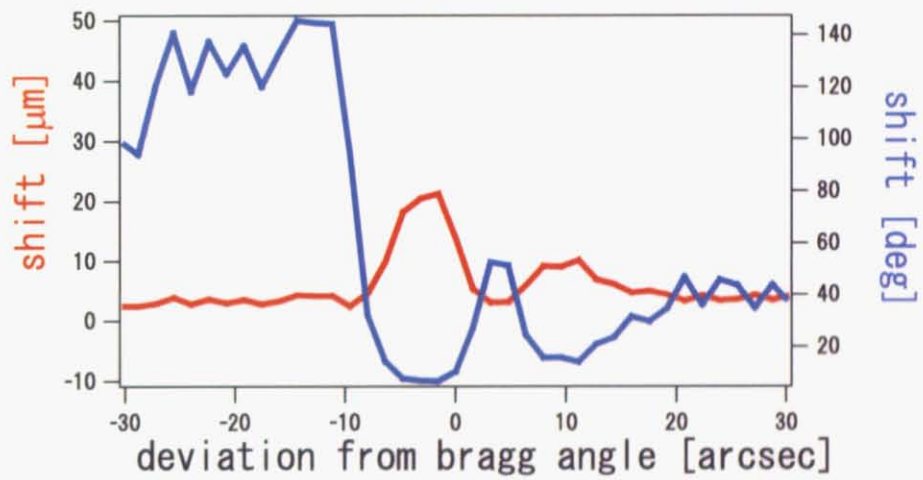


図 8.4: 収差補償で用いた場合のビームシフト。赤:シフトの絶対値、青:シフトの方位角

## 8.2 CCD型X線検出器を用いた実験

### 8.2.1 カメラ長 400 mm

カメラ長 400 mm のときの実験結果を以下に示す。

#### CCD型X線検出器のイメージ

最も顕著な例が  $\chi = -90^\circ$  の場合である。図 8.5 の左から  $\Delta\theta = -12''$  ジャストブラッグに近づくにつれてビーム形状が広がり、エッジがシフトしていることが分かった。図 8.6 から図 8.8 までそれぞれの  $\chi$  での写真を示す。

これらから、ビームの広がる向き、ビームシフトの方向は散乱ベクトルの方位角  $\chi$  の方向と同一であることが分かった。

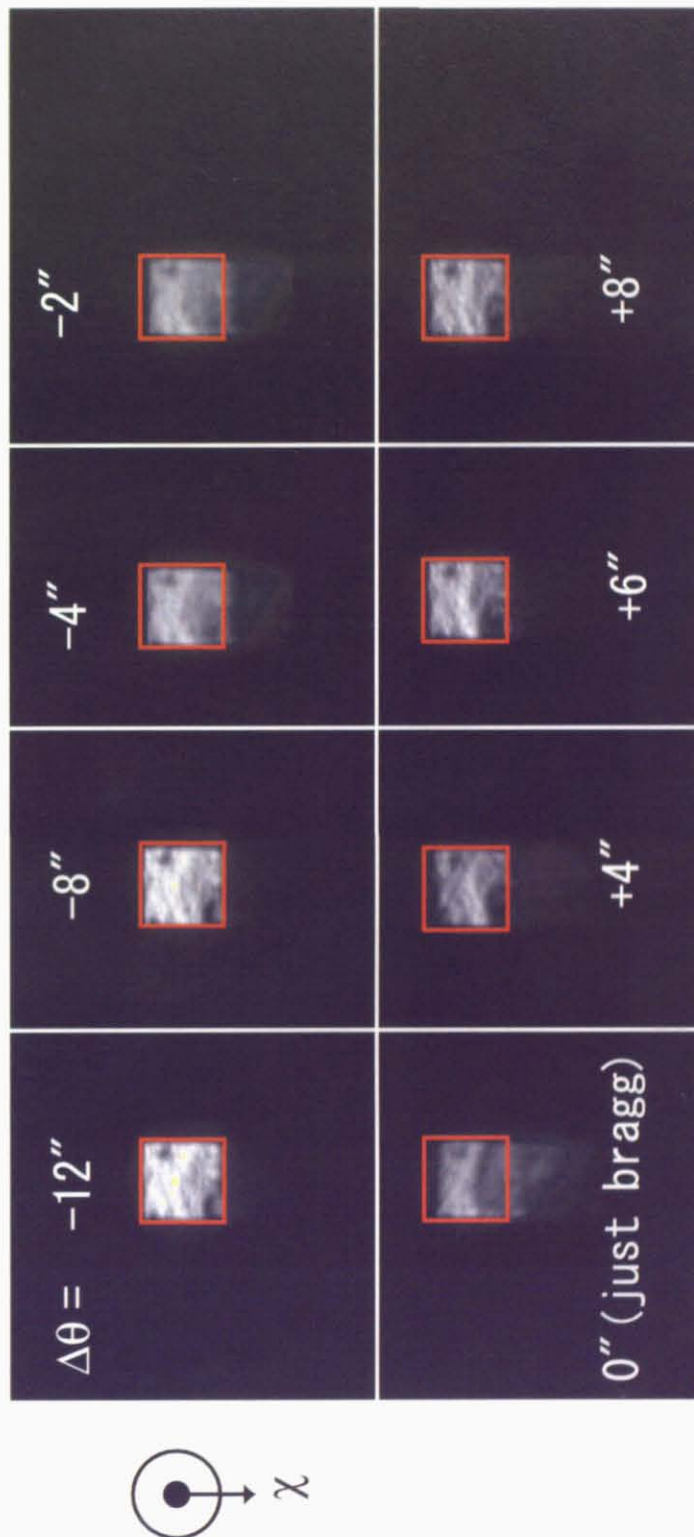


図 8.5:  $\chi = -90^\circ$  のときの CCD 画像。赤枠は、ダイレクトビームの位置を表す

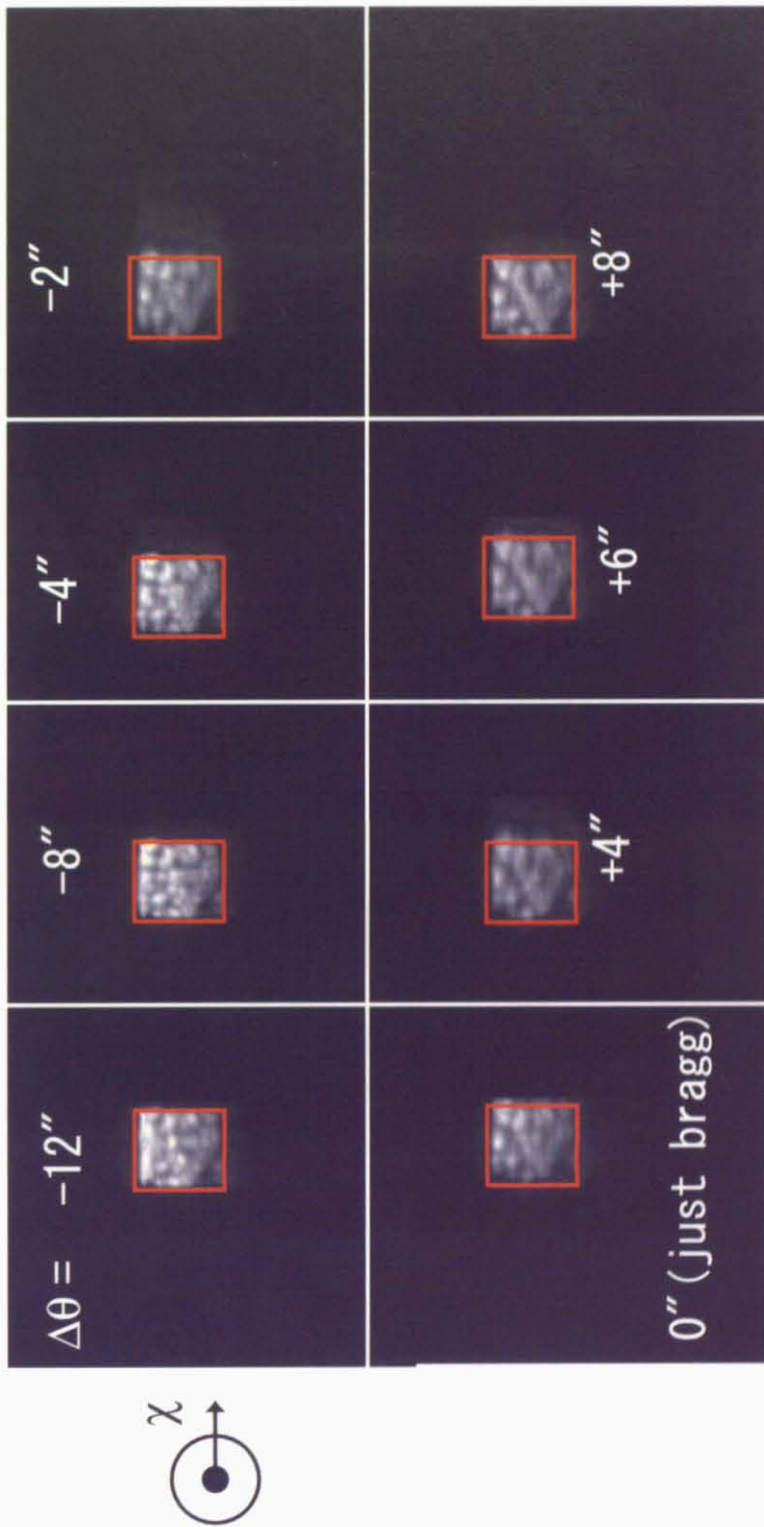


図 8.6:  $\chi = 0^\circ$  のときの CCD 画像。赤枠は、ダイレクトビームの位置を表す

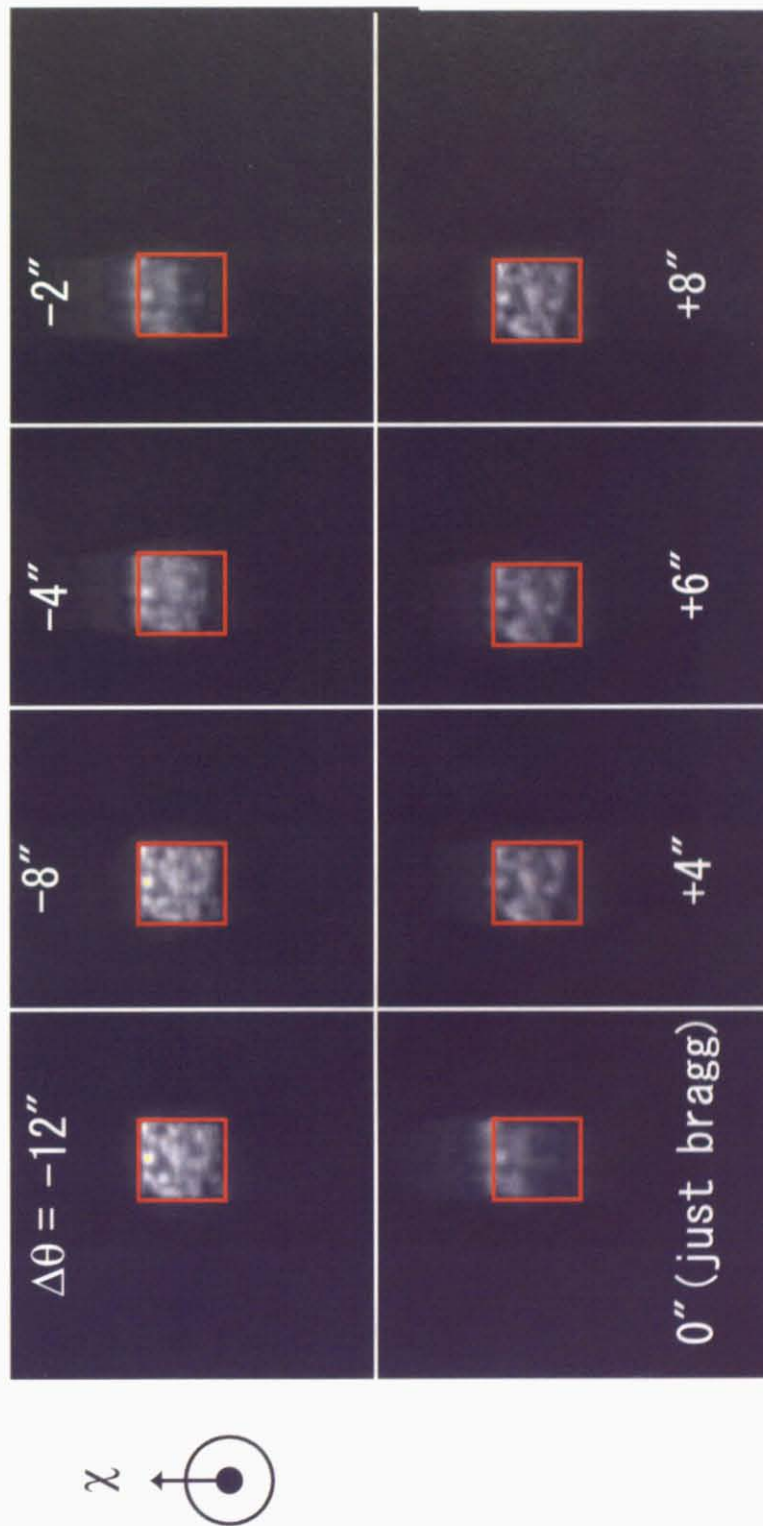


図 8.7:  $\chi = 90^\circ$  のときの CCD 画像。赤枠は、ダイレクトビームの位置を表す



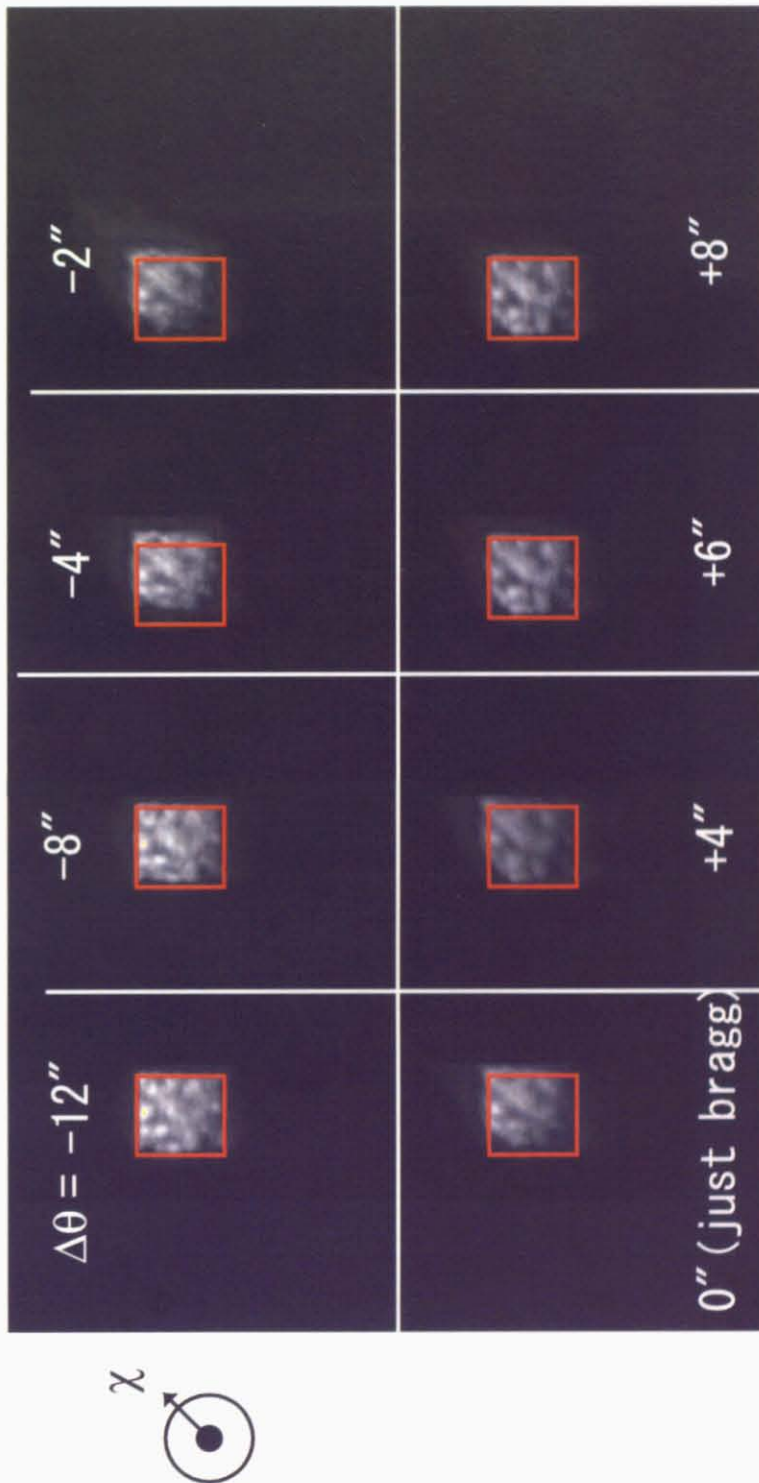


図 8.8:  $\chi = 45^\circ$  のときの CCD 画像。赤枠は、ダイレクトビームの位置を表す

## ビームプロファイル

結果をより詳細に議論するため、 $\chi = -90^\circ$  の垂直方向のビームプロファイルを図 8.9 に示す。

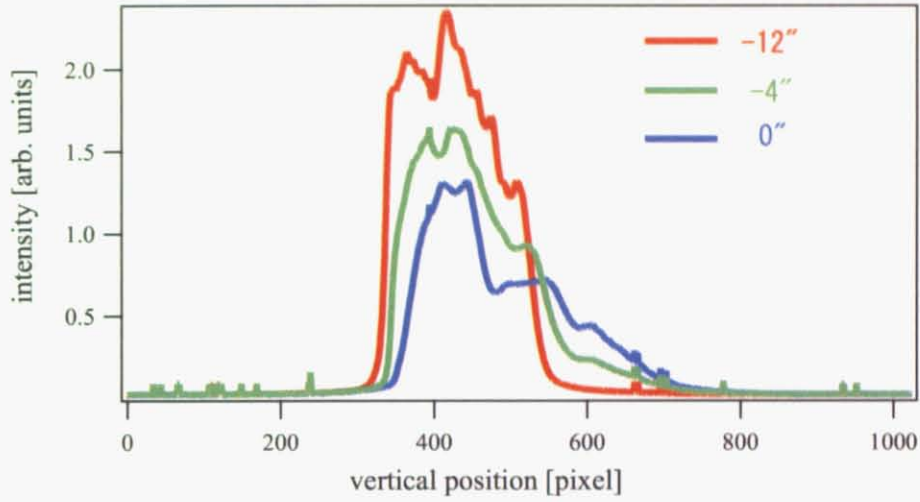


図 8.9:  $\chi = -90^\circ$  のときの垂直方向のビームプロファイルの変化。代表して  $\Delta\theta$  を 3 点 (赤:-12"、緑:-8"、青:0" (ブラッグ条件)) を表示した

ジャストブラッグに近づくにつれて、ビームのエッジと、重心位置がシフトしていることがわかる。また、散乱ベクトル以外の方向にはビームの変化ないことを示すために、水平方向のビームプロファイルを図 8.10 に示す。ダイレクトビームの位置安定性は測定中において  $4 \mu\text{m}$  以下であり、水平方向は変化していないことがわかる。

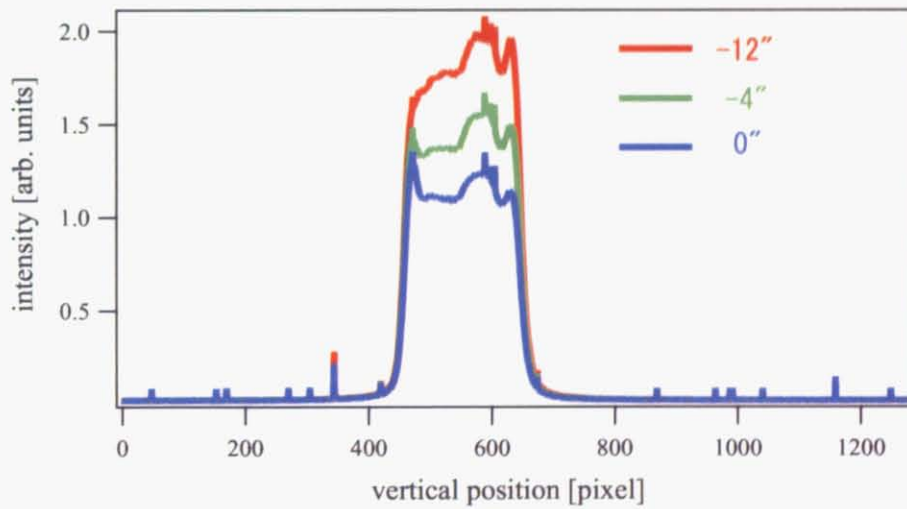


図 8.10:  $\chi = -90^\circ$  のときの水平方向のビームプロファイルの変化。赤:-12"、緑:-8"、青:0" (ブラッグ条件)

以下、その他の  $\chi$  の値についてのプロファイルを示す。ただし、 $\chi = 45^\circ$  のものについてはプロファイルの方向を決めることが困難なため、水平方向、垂直方向ともに表示する。

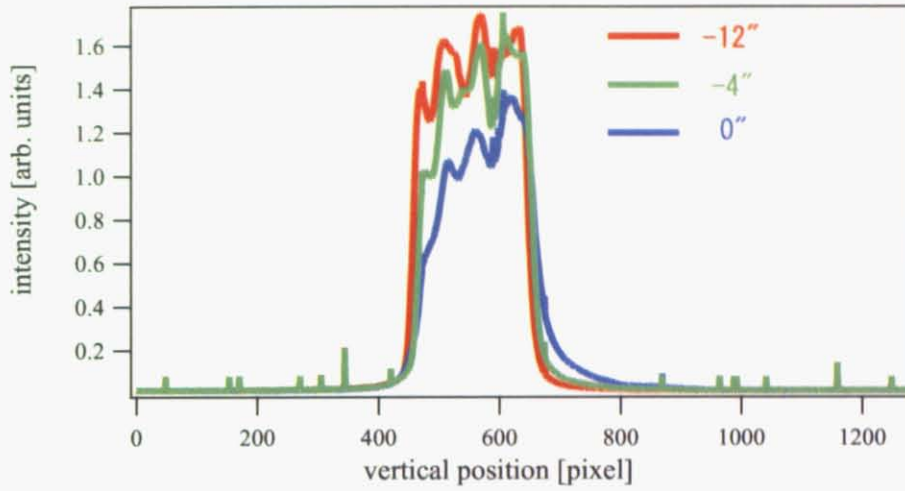


図 8.11:  $\chi = 0^\circ$  のときの水平方向のビームプロファイルの変化。赤:-12''、緑:-8''、青:0''(ブラッグ条件)

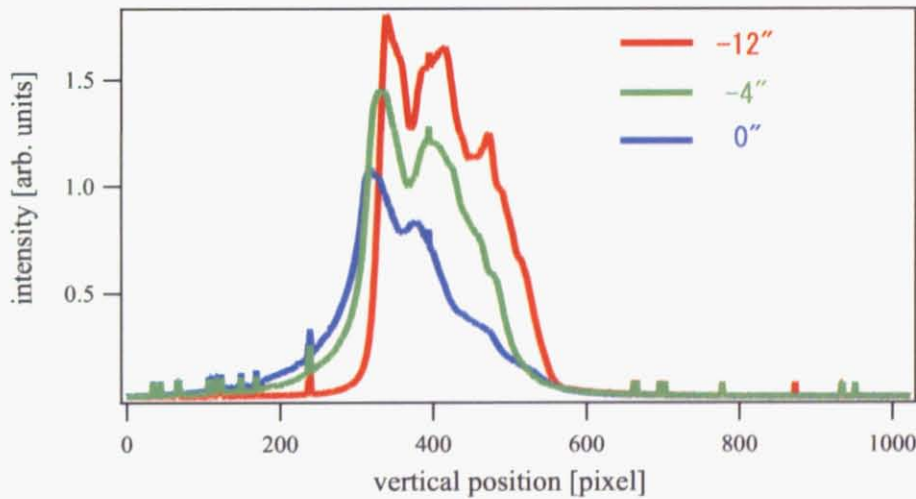


図 8.12:  $\chi = 90^\circ$  のときの垂直方向のビームプロファイルの変化。赤:-12''、緑:-8''、青:0''(ブラッグ条件)

### 重心位置シフト

ビームシフトの指標として、ビームの重心位置を求め、 $\Delta\theta$  の値によってダイレクトビームからどのようにずれるかをプロットした図が図 8.16 である。(標準偏差の幅を見積もるため、ガウシアンでフィッティングした曲線を表示してある。)

ジャストブラッグにて最大で、 $86 \mu\text{m}$  のシフトをしている。その他の角度について以下に示す。また、それぞれの角度での重心位置シフトの最大値と、シフト量をガウシアンでフィッティングしたときの標準偏差の幅を表 8.1 にまとめた。ただし、 $\chi = 45^\circ$  のみ水平方向と垂直方向を 2 乗和をとって平均したものである。

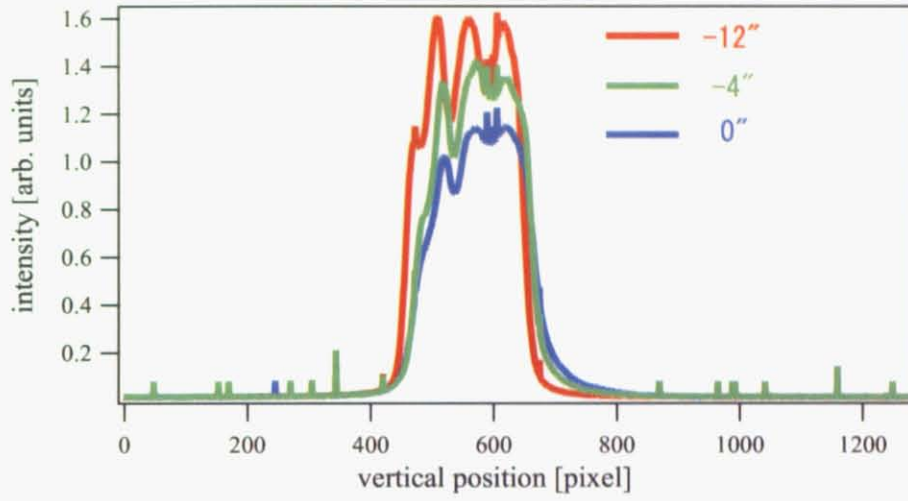


図 8.13:  $\chi = 45^\circ$  のときの水平方向のビームプロファイルの変化。赤:-12''、緑:-8''、青:0''(ブラッグ条件)

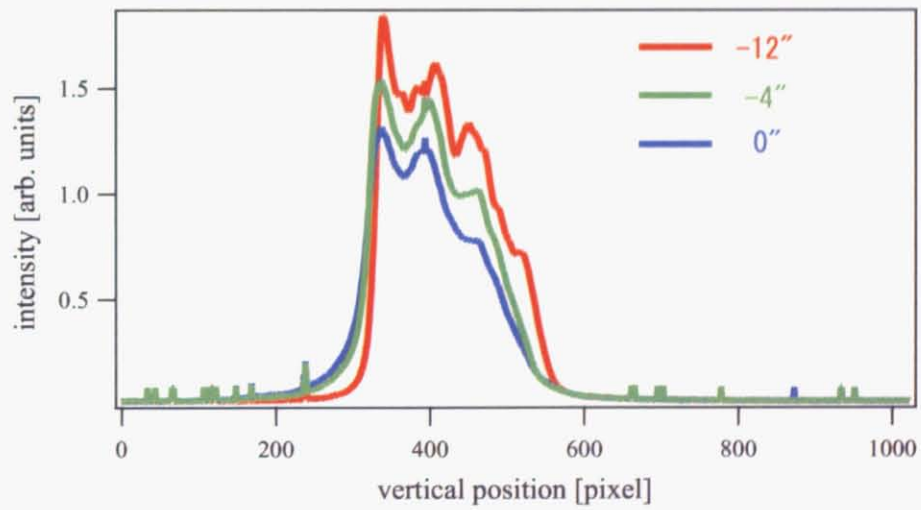


図 8.14:  $\chi = 45^\circ$  のときの垂直方向のビームプロファイルの変化。赤:-12''、緑:-8''、青:0''(ブラッグ条件)

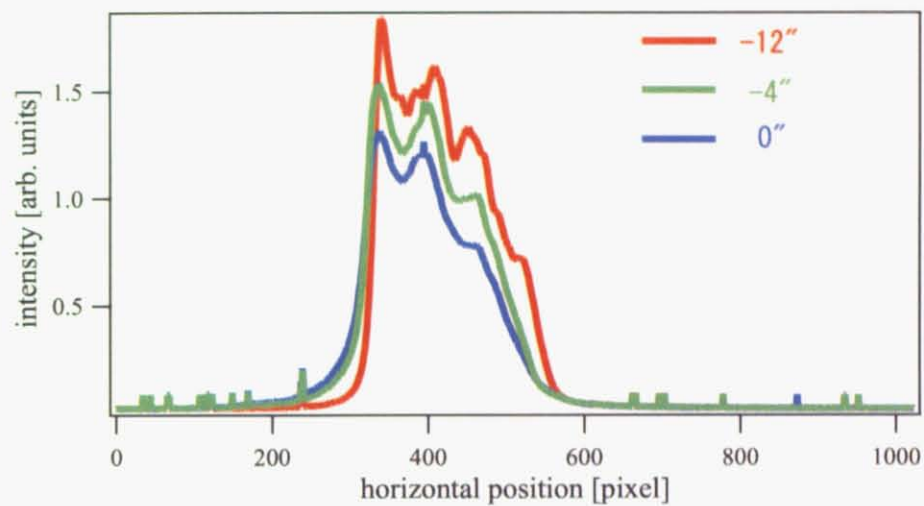


図 8.15: 裏面、 $\chi = -90^\circ$  のときの垂直方向のビームプロファイルの変化。赤:-12"、緑:-8"、青:0"(ブラッグ条件)

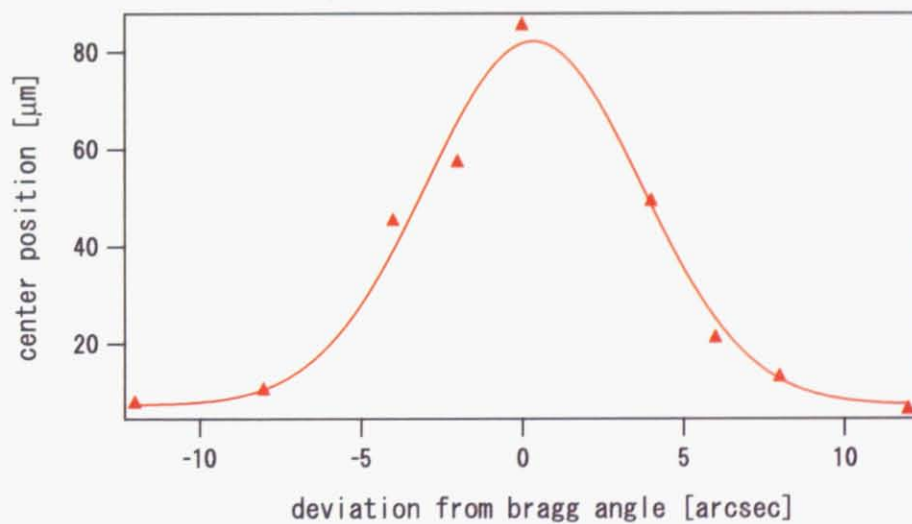


図 8.16:  $\chi = -90^\circ$  のときのビームの重心位置の垂直方向のシフト

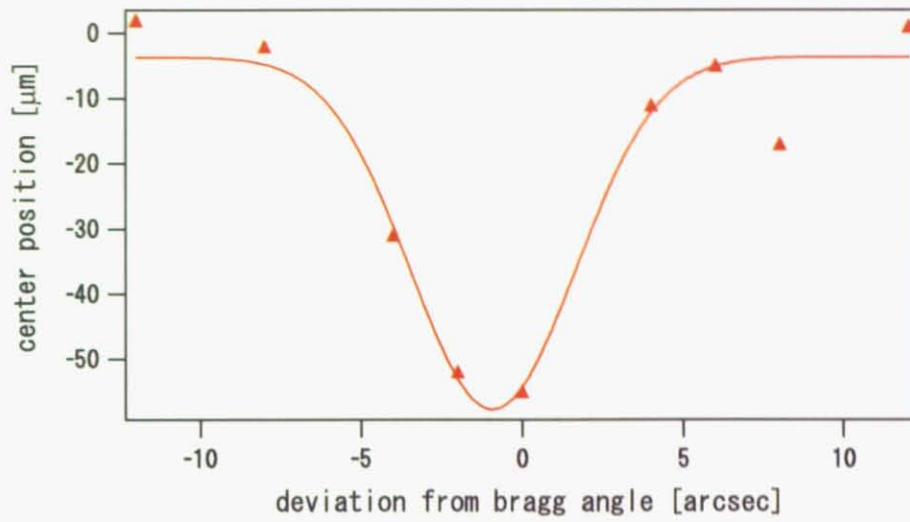


図 8.17:  $\chi = 90^\circ$  のときのビームの重心位置の垂直方向のシフト

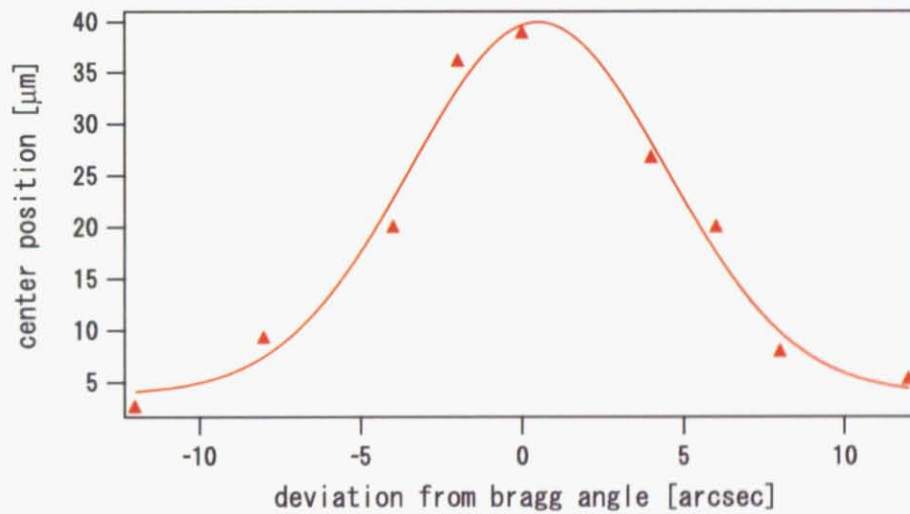


図 8.18:  $\chi = 0^\circ$  のときのビームの重心位置の水平方向のシフト

### 8.2.2 結晶裏面を用いた実験

裏面を用いた実験の、重心位置のシフトをプロットしたグラフを図 8.21 に示す。最大値で約  $122 \mu\text{m}$  シフトしている。おもて面の 1.4 倍のシフト量となる。

### 8.2.3 カメラ長 700 mm での実験

カメラ長を 700 mm で実験したときの重心位置シフトを表 8.2 に示す。ダイレクトビームの位置の揺らぎと同程度の変化しかないとわかる。

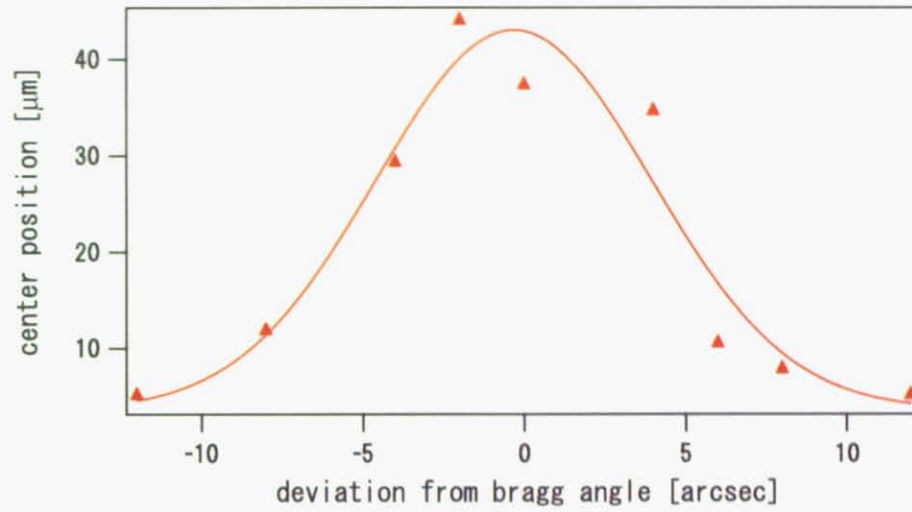


図 8.19:  $\chi = 45^\circ$  のときのビームの重心位置の水平方向のシフト

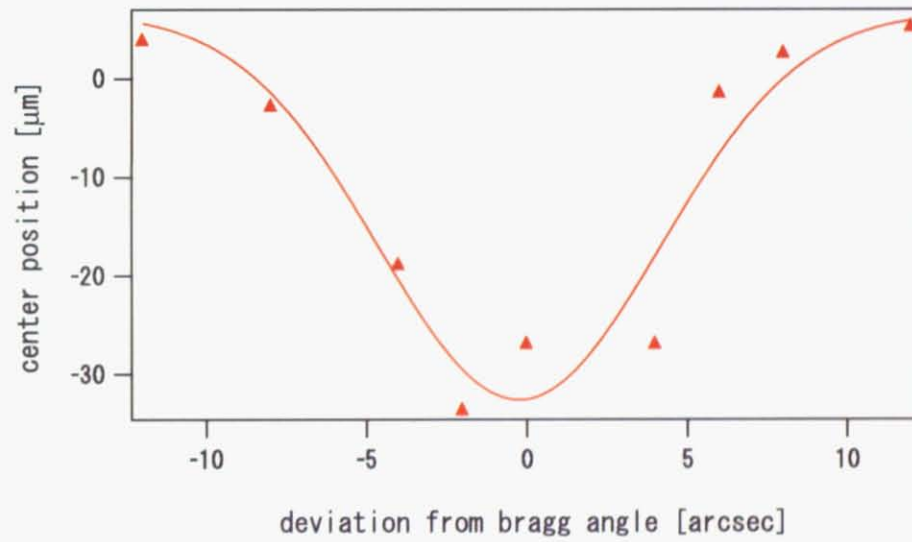


図 8.20:  $\chi = 45^\circ$  のときのビームの重心位置の垂直方向のシフト

表 8.1: 重心シフトの最大値と、それを与える  $\Delta\theta$  の値、ガウシアン幅

	$\chi = -90^\circ$	$\chi = 90^\circ$	$\chi = 0^\circ$	$\chi = 45^\circ$
最大値	86 $\mu\text{m}$	-78 $\mu\text{m}$	39 $\mu\text{m}$	55 $\mu\text{m}$
最大値の $\Delta\theta$	0''	0''	0''	-2''
$2\sqrt{2}\sigma$	9.4 ''	7.4 ''	11.2 ''	12.2''

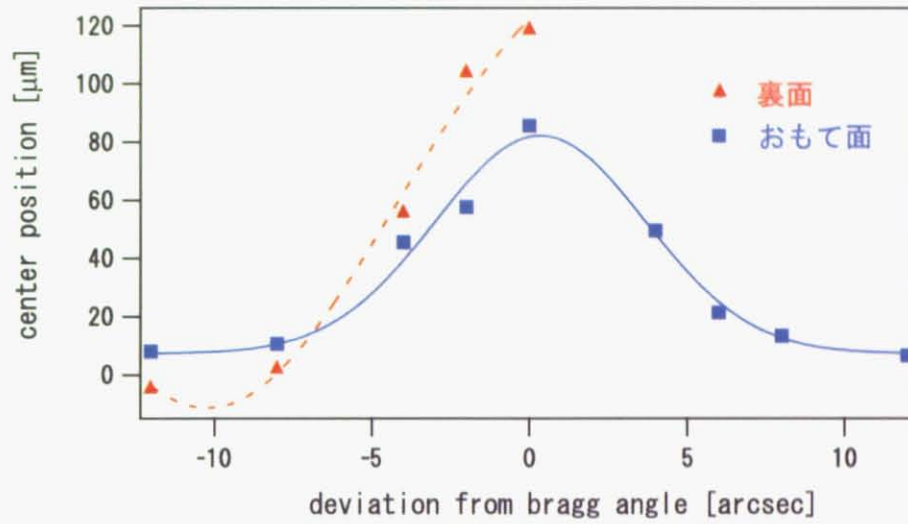


図 8.21:  $\chi = -90^\circ$  のときのビームの重心位置の変化。青が裏面、赤がおもて面。裏面の測定は途中までしか行っていない

表 8.2: カメラ長 700 mm と 400 mm の重心位置シフトの比較 (ジャストブラッグ)

	表	裏
$\chi = -90^\circ$	86 $\mu\text{m}$	nodata
$\chi = 0^\circ$	39 $\mu\text{m}$	38 $\mu\text{m}$
$\chi = 90^\circ$	-78 $\mu\text{m}$	-72 $\mu\text{m}$
$\chi = 45^\circ$ 、水平方向	38 $\mu\text{m}$	38 $\mu\text{m}$
$\chi = -90^\circ$ 、垂直方向	-27 $\mu\text{m}$	-30 $\mu\text{m}$



## 第9章 議論と考察

前章で示した結果を考察する。

### 9.1 予備実験:スリットを用いた実験

#### 9.1.1 シフト量の絶対値と方位角からの考察

方位角のばらつきが、ブラッグ条件から外れたところで大きくなっているのは、方位角を  $\arccos$  で算出しているため、シフト量が小さいところでは誤差が大きくなってしまいうためである。ジャストブラッグ近傍では、シフトの方位角はほぼ散乱ベクトルの方位角  $\chi$  の方向を向いているといえる。

#### 9.1.2 収差補償型配置で用いた場合の結果

図 8.4 をみれば分かるように、収差補償型配置で用いても、シフトの効果は打ち消せない。

シフトの方位角はほぼ  $0^\circ$  を向いているが、詳しい原因は解明できなかった。偏光子を通した放射光は一般的に上下にエネルギー分散を持ち (今回は 0.5 eV 程度)、上下方向がエネルギー分散にかかわる何らかの形でキャンセルアウトされた可能性があるが、詳しい原因は不明である。

また、ピークが 2 つあるように見受けられるが、その原因についても不明である。

### 9.2 CCD 型 X 線検出器を用いた実験

#### 9.2.1 重心位置変化

重心位置の変化 (図 8.16 など) を見ると、予備実験の強度変化からの見積もりよりも小さくなっている。これは、CCD イメージを見れば明らかなようにビームが広がっているため、移動量が大きく見積もられたためと考えられる。予備実験との差異は、特に散乱ベクトルの方位角が垂直方向の場合に大きい、これはビームの広がりが垂直方向の場合の方が大きくなっているためである。

つまり、ダイレクトビームの分布を元に見積もる予備実験のような方法は、シフトを評価するのに不十分であり、正確な評価には 2 次元検出器を用いてビーム全体の変化を観察する必要があるといえる。

また、カメラ長を変えた実験の結果 (図 8.2) を見ると、カメラ長を 1.8 倍にしたにもかかわらず重心位置は、カメラ長 400 mm のときと差異はない。つまり、このシフトはビームが進行方向を変えたことによるものではなく、結晶中で平行移動したことによるシフトと結論付けてよい。

#### 9.2.2 ビームの広がりについて

ビームの広がりについて考えてみる。実はビームの広がりについては、結晶が完全であるとしても、動力的回折理論 (3 章) で説明できる。有限な角度発散を持ったビームは、結晶内でボルマンファンとよばれる傾

域中 [30–32] で広がりながら伝播する。ビームの広がり、このボルマンファン内のビームの伝播で説明できる。われわれのダイヤモンド移相子は、非対称ラウエケースで用いられているので、図 9.1 のように X 線が回折する。十分細いビームがボルマンファンで広がりうる領域は、 $170\ \mu\text{m}$  程度なので、オーダー的にはビームの広がりを

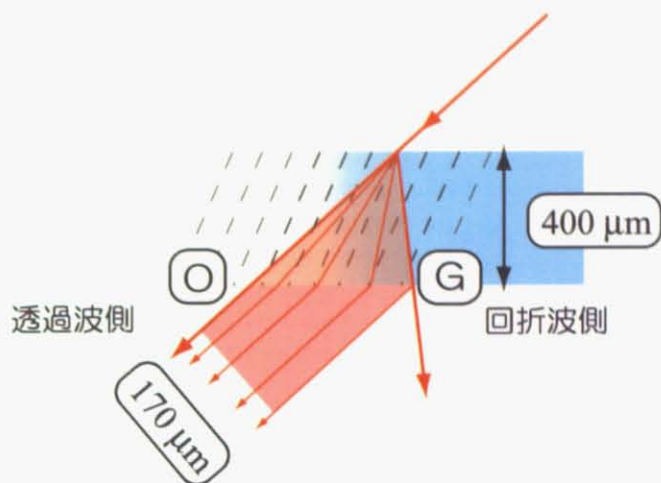


図 9.1: ボルマンファン中でのビームの広がり

十分説明しうる。実際、この広がりによって XMCD 測定に系統誤差が生ずるという報告もなされている [10]。また、重心のシフトは垂直はね、つまり  $\sigma$  偏光に対応する場合に大きく、水平はね、 $\pi$  偏光に対応する場合に小さい。これは、 $\sigma$  偏光の方が物質と相互作用しやすく (つまり  $\chi_g$  が大きい)、動力的な効果を受けやすいからだと考えられる。

しかし、裏面を使った実験をみると、散乱ベクトル、偏光状態は同じであるにもかかわらず重心のシフト量が大きく異なる。カメラ長  $700\ \text{mm}$  の実験において、重心位置は  $400\ \text{mm}$  の場合とほとんど変わらないが、これは同時にシフト量の再現性をも示唆している。シフトの最大値が 1.4 倍というのは、有意な差であることは明らかである。これは、結晶の場所ごとによって異なる、歪みのような量に依存することを示唆する。以下、歪みの効果について考察する。

の二つの寄与があると考えられる。つまり、ビームプロファイルを詳細に調べ、歪みによる効果を取り除く必要がある。ビームプロファイルを見ると、ビームの端が平行移動しているものが多いことが分かる。ボルマンファンによる広がり、ビームの平行移動を与えないはずなので、ビームの端が、歪みによるシフトを代表する可能性がある。そこで、重心シフト (:center と名付ける) に加え、

- 「ビームの端とゼロレベルとの半値を与える点」 :half と名付ける
- 「ビームプロファイルの根元」 :root と名付ける

という量をビームプロファイルから抽出した、歪みによるシフトを抽出することを試みた。実際にはプロファイルから切り出すさいの線引きがややあいまいであり、系統的な誤差もある程度ふくむ。しかし、傾向を議論するには十分よい定義である。

以下、center(水色実線)、half(青四角)、root(赤丸)をプロットしたグラフを順次示す。図中において、O 側と記されているのは図 9.1 の O 側であり、G 側と記され、グラフの枠が黄色になっているものは 9.1 の G 側で、散乱ベクトルが指し示す方向である。

全体的な傾向として、O 側の root は、G 側の root より小さい。これはプロファイルを見ても明らかであるが、G 側の root はビームプロファイルのくずれによって裾野が広がるためである。結局、G 側の root はビームプロ

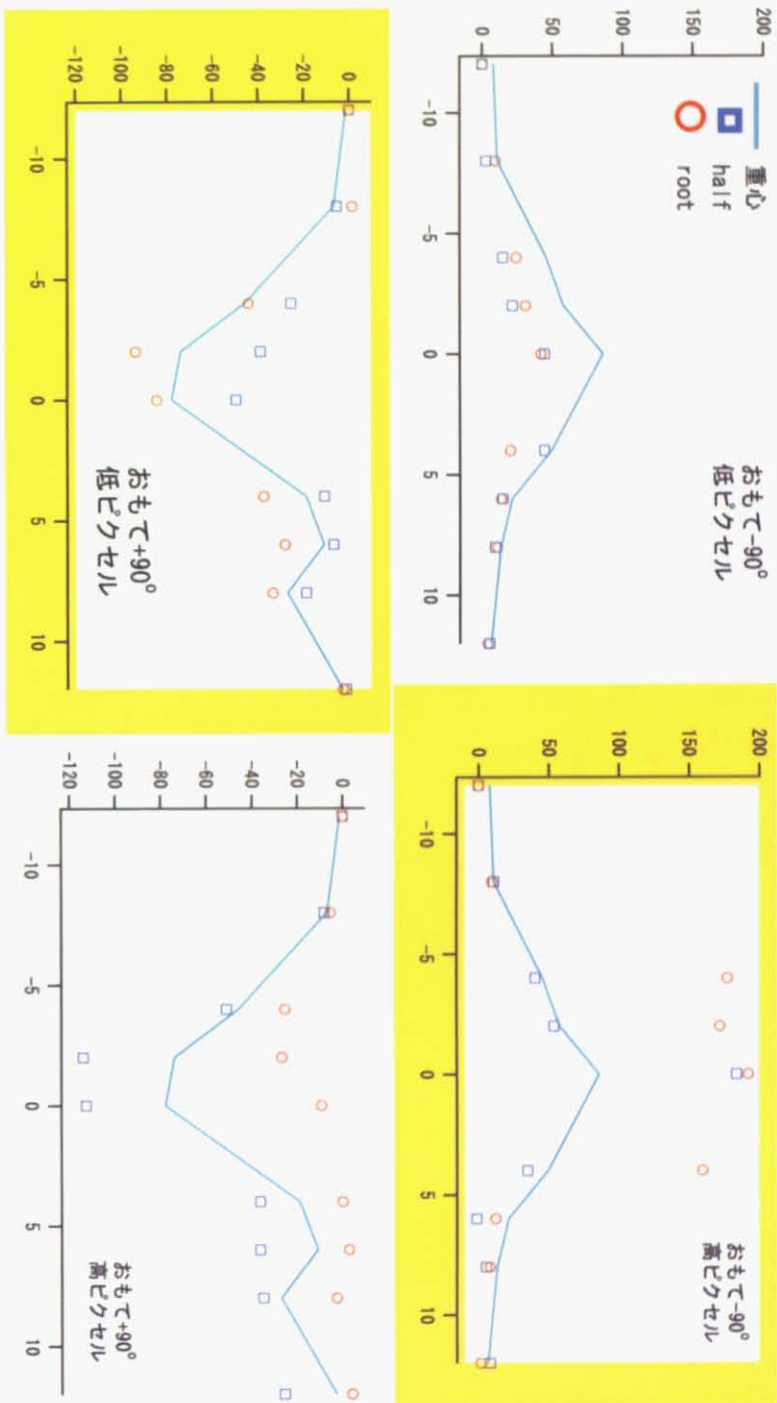


図 9.2: ビームプロファイルより抽出した、center(水色)、half(青四角)、root(赤丸)

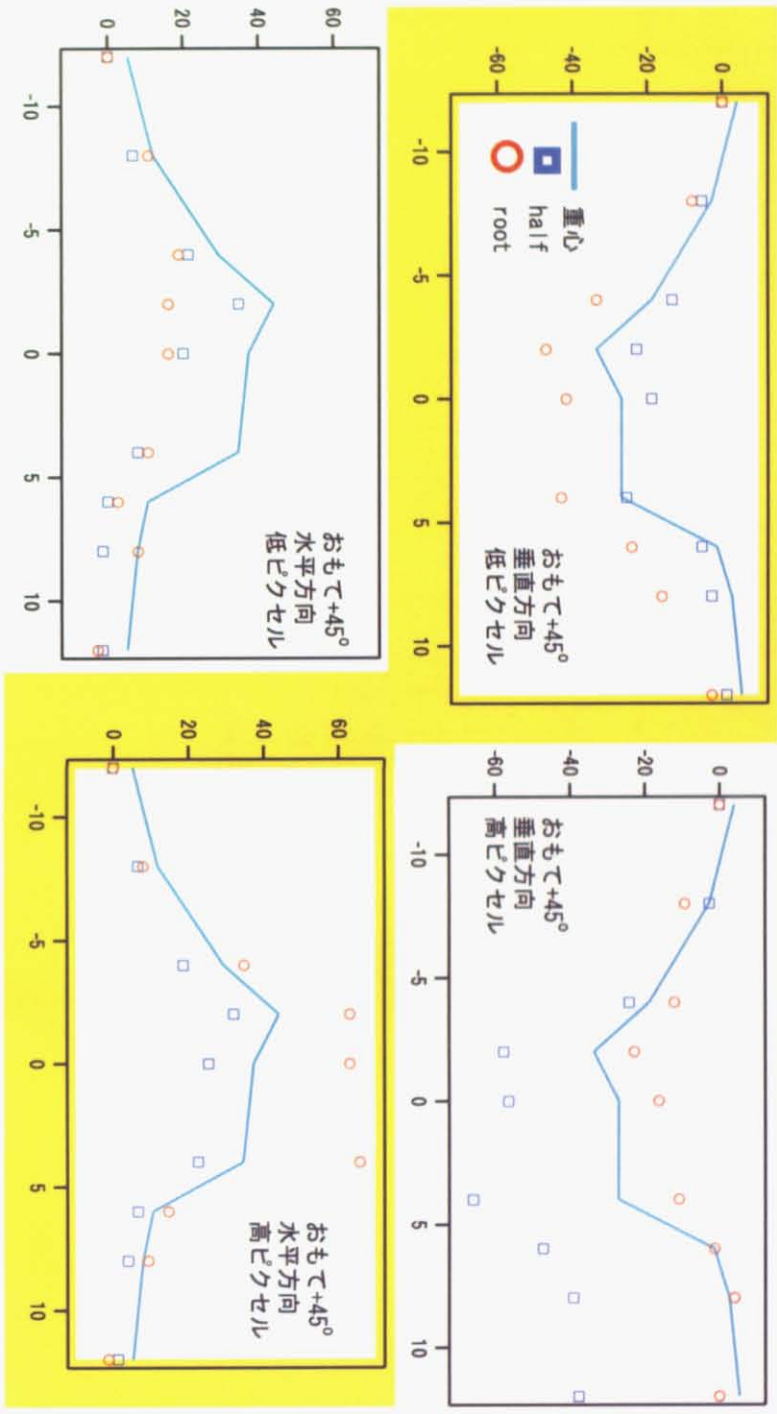


図 9.3: ビームプロファイルより抽出した、center(水色)、half(青四角)、root(赤丸)

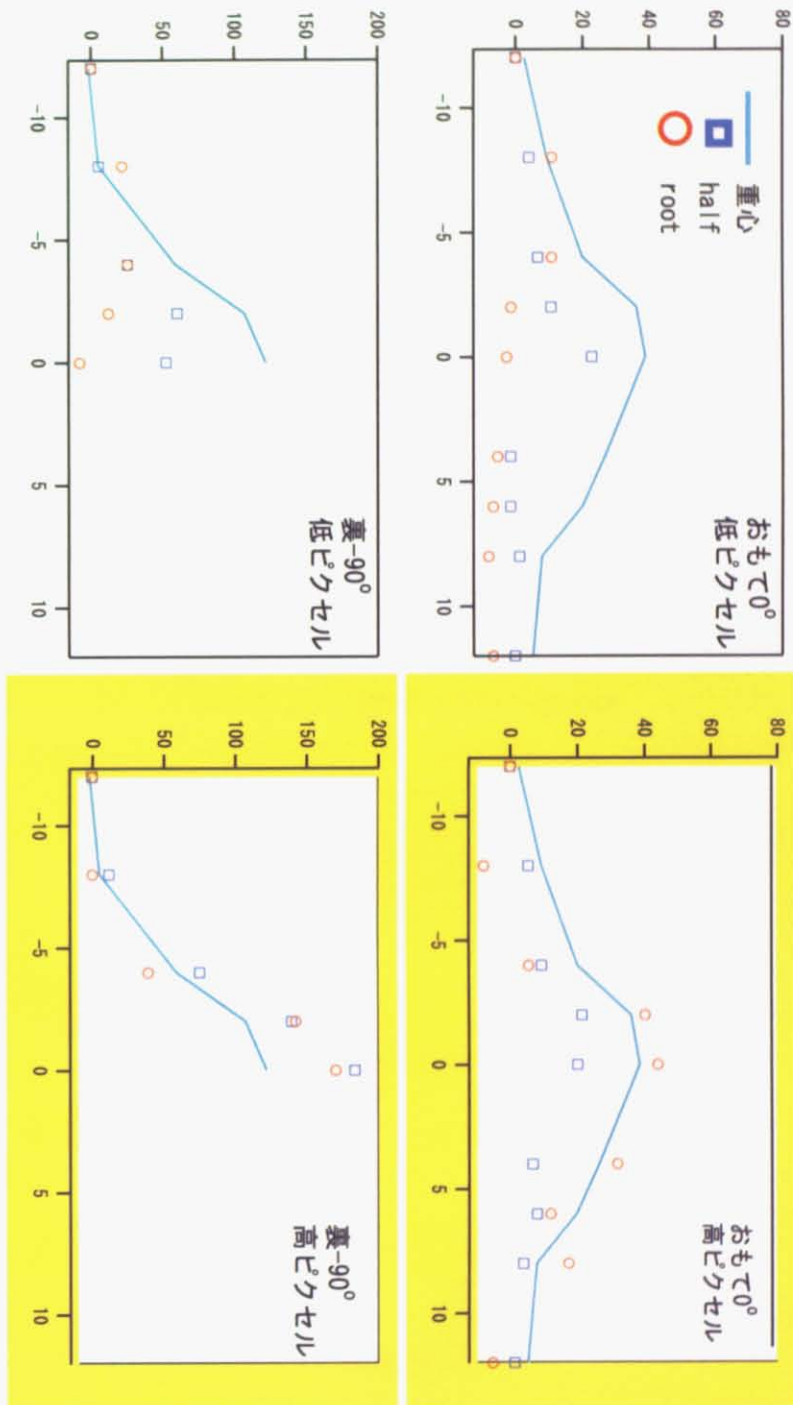


図 9.4: ビームプロファイルより抽出した、center(水色)、half(青四角)、root(赤丸)

ファイルのくずれ+エッジシフトを見ていることになり、シフトを表す量として適切でない。

また、O側において  $|\text{half}| > |\text{root}|$  の傾向が見て取れるがこれは、halfにはビームプロファイルのくずれ効果に乗ってくるためと考えられる。よって「今までの議論でビームシフトの指標として最適なのは、O側の root であると考えられる」。

### 9.2.3 ビーム端の議論

O側の rootに着目して考える。rootのみを切り出したグラフを、以下に示す。

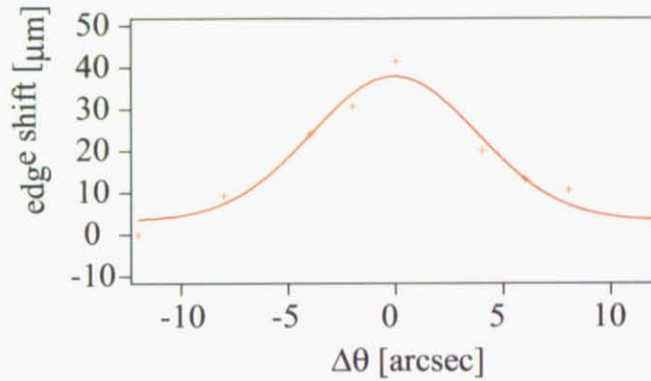


図 9.5:  $\chi = -90^\circ$  のときの O 側 root

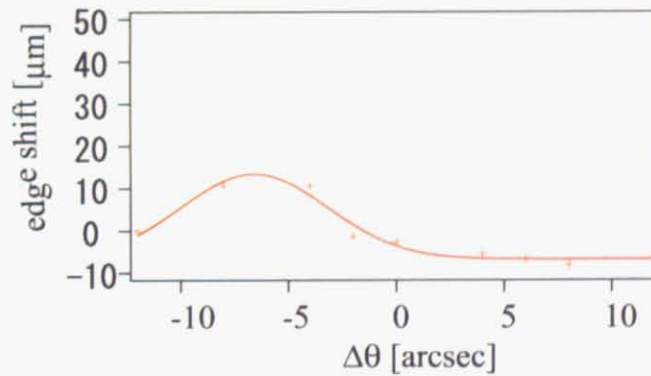


図 9.6:  $\chi = 0^\circ$  のときの O 側 root

全体的な傾向として、 $\sigma$  偏光のとき root のシフトが大きく、 $\pi$  偏光になるにつれて root のシフトは小さくなる事が分かる。 $\sigma$  偏光のとき root のシフト量は最大 40  $\mu\text{m}$  である事が分かる。

### 9.2.4 重心移動の差での議論

ビーム広がり、歪みの情報を敏感に反映するならば、場所ごとの重心シフト量の差分をとれば、絶対的なシフト量は分からないにしても、歪みの差分についての情報を得ることができるであろう。そこで、場所ごとの重心シフトの差分をとる。

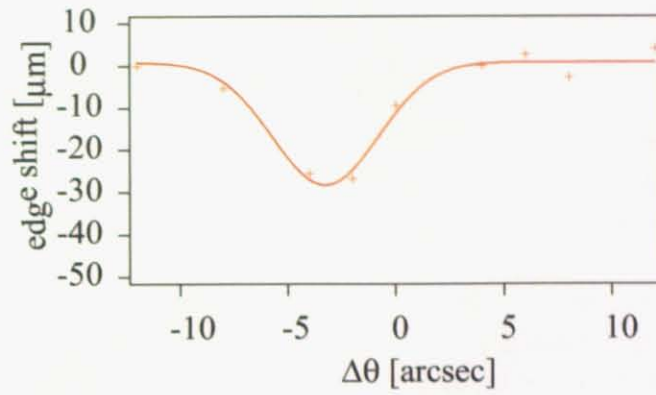


図 9.7:  $\chi = 90^\circ$  のときの O 側 root

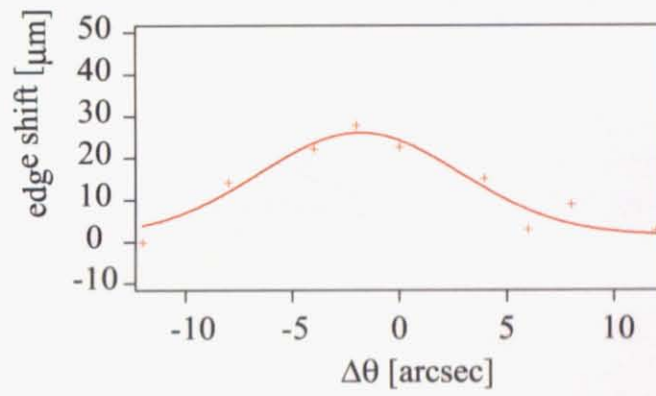


図 9.8:  $\chi = 45^\circ$  のときの O 側 root

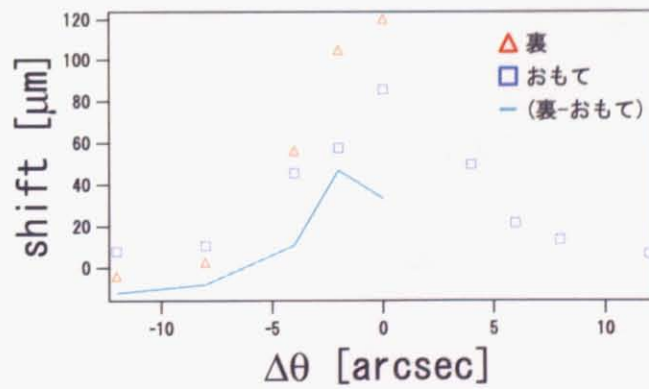


図 9.9:  $\chi = -90^\circ$ 、おもて面と裏面の重心シフトと差

差は、最大で 40  $\mu\text{m}$  程度であり、結晶歪みによって数十  $\mu\text{m}$  のシフトがあることが分かる。

### 9.2.5 ベリー位相を導入した理論との関係

今回の実験結果を、ベリー位相の概念を取り入れた理論と比較することをこころみる。ただし、ベリー位相の理論は、あくまで先ほど述べた歪みのある結晶中での同じ現象を、違う立場から (波束の中心位置に対するベクトルポテンシャルを導入して) 考察したのものであり、通常の動力的回折理論から導かれる以上の説明を与えるものではないということを再度注記しておく。

この取り扱いの特徴は、アイコナール理論や高木-トウバンの理論による歪みの評価などのように干渉縞を考慮してシミュレーションする必要もなく、波束の中心位置のシフトで結晶歪みを評価できる可能性があることである。また、シフトをブラッグ角からのずれ  $\Delta\theta$  の関数として簡単に表現でき、ふるまいを予測できる点である。また、純粋に物理学的な視点からも大変興味深い。

center の差 (図 9.9 など) をみると、一番大きく差が現れている場所は、ほぼぴったりブラッグ条件であることがわかる。center の差が、歪みのシフトをあらわす指標になりうるのであれば、ベリー位相を導入した理論と一致する。

今度は、root について議論する。重心シフトのときと同様に、数十  $\mu\text{m}$  程度のシフトを与えるが、ピーク位置に着目した場合に、全体的にブラッグ条件より低角の位置で最大値をとっている。これは、以下のように考えるとベリー位相の理論と一致する。

放射光は、数秒程度の発散角を持っているため、ビームの場所によって、結晶に対する入射角が異なる。今、ピンダイオードによって「ブラッグ条件」として認識されるのは、ビームの中央の位置である (図 9.10)。いっぽう、O 波側のビーム位置ではそれより高角側に発散をもつため、ブラッグ条件が低角側にあらわれることになる。

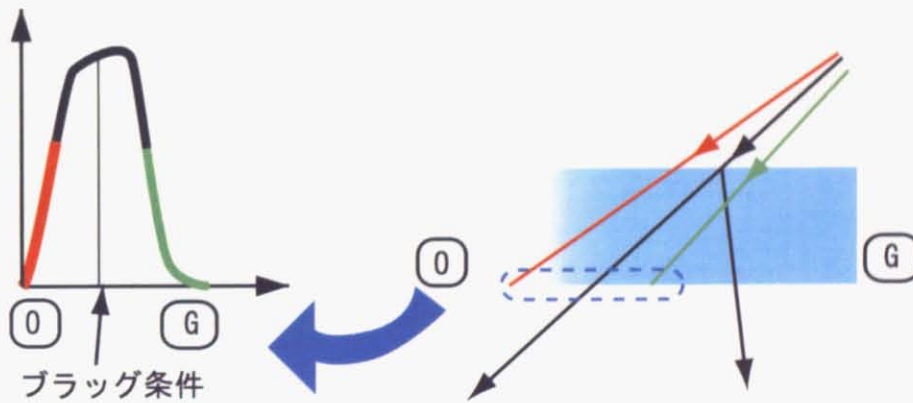


図 9.10: O 波側の放射光の発散

$\sigma$  偏光の発散は  $2\text{-}3^\circ$ 、 $\pi$  偏光の発散角は  $4\text{-}6^\circ$  程度であることを考慮に入れて比較すれば、確かにその付近にピークが出ていることが分かる。このように考えると、O 波側の root のシフトもベリー位相の理論と一致していることが分かる。



## 第10章 まとめと今後の展望

本研究についてのまとめを以下に示す。

まず、スリットによる予備実験では、収差補償型で用いた場合でも、ビームシフトの影響が打ち消されるわけではないことがわかった。そのとき、シフトの方向は、水平方向であることが分かった。しかし、原因については理論的な考察はつけられていない。

CCD型X線検出器を用いた実験では、ブラッグ条件近傍で、ビームが広がり、かつ全体がシフトしていることが分かった。ビームの広がりについては、主にはボルマンファン中でのX線の伝播で説明できるが、ビームあるいは結晶の局所的な情報を敏感に反映もしていることが分かった。歪みによるシフトを議論するためには、歪みのない状態でのシフトを抽出する必要がある。それには、rootを指標とする方法と、局所毎の差分をとる方法が適切と考えられるが、どちらの方法にせよ、ベリー位相を導入した理論と突き合わせるためには不十分であり、より最適な抽出方法を模索する必要がある。

今後の展望を述べる。

角度発散と偏光の効果を分離するために垂直偏光で同じ実験を行う

まず重要なのは、歪みによるシフトを抽出することである。本研究では、移相子の機能に関連するということで、ダイヤモンドを用いたが、Siなどの完全性を高くできる結晶を用いることにより、逆に歪みのない状態でのシフトを抽出することができる。あるいは、製造法によってSi歪み具合が異なることを利用し、歪みによるシフトの大きさがどのように異なるかを調べる。Siを高エネルギーで用いれば、ペンデルビートの観察を行い、高木トウパンの理論と比較することもできる。

さらに、ビーム位置、結晶は固定で、入射する偏光を変化させて測定することも考えられる。今回は、移相子ゴニオの $\chi$ 軸をまわして偏光を変える方式をとったが、入射ビームと移相子ゴニオの $\chi$ 軸の中心軸が一致していない場合、結晶にあたる場所がずれてしまうので、偏光自体を変える必要がある(このとき、当然透過型移相子は利用してはいけないため、挿入光源などで偏光を変える必要がある)。また、本実験ではs偏光と垂直跳ね、p偏光と水平跳ねがカップリングしているため、それぞれの効果を独立に分けることが重要であると考えられる。

われわれのユニバーサルX線エリプソメーターは、可搬性、自由度に富むため、こうした細かい変更が比較的容易に可能である。今後は、ユニバーサルX線エリプソメーターの特長を活かし、歪みの成分だけをうまく抽出する実験を行うべきである。

# 謝辞

本研究を行ううえでお世話になった方々に、この場を借りて厚くお礼を申し上げたいと思います。

指導教官である雨宮慶幸教授は、研究内容はもちろん、研究に対する心構えについてもご指導くださいました。深く感謝いたします。上エ地義徳助手は、私が属する偏光グループでの実験をご指導してくださいました。また、私生活でも興味深い知識、知恵をご教授いただき、大変感謝しております。OBである美才治悠樹氏は、先輩として偏光グループの実験について丁寧に教えて頂きました。また、つくば生活でのサポートをしてくださいました。深く感謝いたします。博士2年の篠原佑也氏は、違う研究グループであるにも関わらず、セミナーの開催を助けてくださったり、ディスカッションでも貴重なご意見をくださったりと大変お世話になりました。私が本研究を進めていく上で道筋をつけるのを全面的に支援してくださいました。深く感謝いたします。物理工学科、永長研究室の澤田桂氏には、ベリ一位相についての議論でお世話になりました。ご自身の博士論文審査でお忙しい時期であったにもかかわらず、私にも分かりやすいように本当に丁寧な解説をつけて下さいました。深く感謝いたします。JASRIの鈴木基寛氏には、ビームシフトに関連する貴重な論文をご提供いただきました。大変参考になりました。深く感謝いたします。秘書の川尻幸代女史には、沢山の心遣いをしていただきました。事務的な仕事でお世話になっただけでなく、私のことを心から気遣っていただき、励ましてくださいました。深く感謝いたします。同じM2の高見沢忠君、M1の神原一暁君、前島健人君、B4の小嶋秀徳君、西川尚志君は、研究グループが異なるためお互い直接研究に関わることはなかったものの、数学的なディスカッションにつきあってもらったり、実験装置などについて情報を教えてもらいました。深く感謝いたします。

ここに挙げた以外の方も含めて多くの方々のおかげで本論文を完成させることができましたことに感謝し、結びにしたいと思います。

## 参考文献

- [1] G. Schütz, W. Wagner, W. Wilhelm, P. Kienle, R. Zeller, R. Frahm and G. Materlik: Phys. Rev. Lett. **58**, 737 (1987).
- [2] K. Sato, Y. Ueji, K. Okitsu, T. Matsushita, and Y. Amemiya: J. Synchrotron Rad., **8**, 1021 (2001).
- [3] D. H. Templeton and L. K. Templeton: Acta Cryst. A **36**, 237 (1980).
- [4] 上エ地 義徳、沖津 康平、佐藤 公法、雨宮 慶幸：放射光学会 Vol. **13**, No. 1, 48 (2000).
- [5] K. Sato, Y. Ueji, K. Okitsu, T. Matsushita, J. Saito, T. Takayama and Y. Amemiya: Trans. Magn. Soc. Japan, **2**, 238 (2002).
- [6] L. Alagna, T. Prosperi, S. Turchini, J. Goulon, A. Rogalev, C. Goulon-Ginet, C. R. Natoli, R. D. Peacock, and B. Stewart: Phys. Rev. Lett. **80**, 4799 (1998)
- [7] K. Hirano, T. Ishikawa, and S. Kikuta: Rev. Sci. Instrum., **66** 1604 (1995).
- [8] 上エ地義徳:総合研究大学院大学博士論文 (1998)
- [9] 平野馨一、沖津康平、百生敦、雨宮慶幸:偏光と位相に関連した放射光 X 線利用研究 (X 線分析の進歩 第 33 集 2002)
- [10] L. Varga, C. Giles, Y. L. Zheng, S. Pizzini, F. de Vergevin, A. Fontaine and C. Malgrange: J. Synchrotron Rad., **6**, 1125 (1999).
- [11] 石川哲也ほか：1km ビームライン・コミッショニング報告、SPRING-8 Information vol.5,2000
- [12] M. V. Berry: Proc. Roy. Soc. London Ser., A **392**, 45 (1984).
- [13] M. Chang and Q. Niu: Phys. Rev. B **53**, 7010 (1996).
- [14] K. Sawada, S. Murakami, and N. Nagaosa: Phys. Rev. Lett., **96**, 154802 (2006).
- [15] Eugene Hecht 著、尾崎義治・朝倉利光訳:光学 I,II,III(丸善株式会社 2003)
- [16] Schutz et al.: Phys. Rev. Lett. **58**, 737 (1987).
- [17] 菊田恒志:X 線回折・散乱技術上 (東京大学出版会 1992)
- [18] 加藤範夫:X 線回折と構造評価 (朝倉書店 1995)
- [19] M. Onoda, S. Murakami, and N. Nagaosa: Phys. Rev. Lett., **93**, 083901 (2004).
- [20] 永長直人:日本物理学会誌, **59** 520 (2004).
- [21] 澤田桂:私信

- [22] 野村昌治:電離箱、多素子 SSD の XAFS への応用
- [23] カリテイ著、松村源太郎訳:X 線回折要論 (アグネ承風社 1980)
- [24] K. Okitsu, T. Oguchi, H. Maruyama and Y. Amemiya:J. Sync. Rad. **5**, 995 (1998).
- [25] U. Bonse, M. Hart: Appl. Phys. Lett., **6**, 155 (1965).
- [26] 佐藤公法:東京大学大学院博士論文 (1998)
- [27] K. Sato, Y. Ueji, K. Okitsu, T. Matsushita, J. Saito, T. Takayama, and Y. Amemiya:Phys. Rev. B **65**, 134408 (2002).
- [28] K. Okitsu, Y. Ueji, K. Sato, and Y. Amemiya: Acta Cryst., A **58**, 146 (2002).
- [29] K. Okitsu, Y. Ueji, K. Sato, and Y. Amemiya: J. Synchrotron Rad., **8**, 33 (2001).
- [30] Andre Authier: Dynamical Theory of X-Ray Diffraction., OXFORD SCIENCE PUBLICATIONS (2001).
- [31] N. Kato: Acta Cryst., **13**, 349 (1960).
- [32] J. Gronkowski and C. Malgrange: Acta Cryst., A **40**, 507 (1984).