

卒業論文

**X 線多波回折を利用した
X 線偏光状態の完全決定**

指導教員 雨宮慶幸 教授 印

平成22年 2月 提出

東京大学工学部物理工学科

080510 伊藤祐斗

目次

第 1 章 序論.....	1
第 2 章 理論.....	4
2.1 X 線結晶回折理論.....	4
2.1.1 X 線結晶回折の条件.....	4
2.1.2 X 線多波回折の条件.....	6
2.1.3 X 線多波回折の運動学的回折理論	12
2.2 偏光	20
2.2.1 偏光の表現方法について	20
2.2.2 X 線透過型移相子	23
2.3 X 線多波回折の偏光依存性.....	26
2.3.1 偏光状態の混合	26
2.3.2 偏光決定の式.....	28
第 3 章 実験と結果.....	33
3.1 実験	33
3.1.1 実験装置.....	33
3.1.2 実験方法.....	35
3.2 実験結果	38
3.2.1 Si(620)結晶を用いた偏光解析実験.....	38
3.2.2 多波回折の検出実験.....	39
3.2.3 多波回折を用いた偏光解析実験	44

第4章 考察.....	61
4.1 多波回折による偏光解析法の実用化に向けて.....	61
4.2 多波回折研究としての本研究の意義	63
第5章 まとめ.....	65
付録 A.....	66
付録 B.....	68
参考文献	71
謝辞	73

第1章 序論

放射光は現代の科学技術に欠かせないツールである。利用されている分野は、物性科学、生命科学、化学、医学などの多岐にわたる。放射光の特長として、連続スペクトルであることが挙げられる。放射光は、X線領域から赤外領域までの広範囲にわたるエネルギー領域の光を出すことができ、使用する光のエネルギー領域に応じた実験が可能である。さらに放射光は高輝度であり、ビームの指向性が良く、単位面積当たりの光束が大きい。このことは微小な物質の構造や性質を解析するのに役立つ。また、放射光は電子の軌道が曲げられる方向に偏光しており、偏光を利用した実験を行いやすい。そして放射光はパルス性をもつので、短い時間スケールでの物質の挙動を探ることができる。さらに挿入光源であるアンジュレーターを用いれば、準単色の放射光も利用可能である。

このように優れた性質をもつ放射光であるが、現在までの発展の段階は大まかに第1世代、第2世代、第3世代そして新第3世代に分けられる [1]。第1世代と呼ばれる初期段階では、放射光は高エネルギー実験用のシンクロトロンに寄生する形で用いられていた。その後、放射光の有用性が認められて放射光専用の施設が作られるようになったのが第2世代である。さらに第3世代と呼ばれる段階では高輝度の放射光を得るためにアンジュレーター、ウィグラーといった挿入光源を多数備えた6~8GeVの大型放射光施設が作られた。現在は新第3世代の段階であり、第3世代とほぼ同等の性能を持ちながらリングのエネルギーは第3世代よりも低い(2~4GeV) 中型のコストパフォーマンスに優れた放射光施設が建設され稼働している。いずれの段階についても、基本的には円形加速器である蓄積リングを主体とする光源である。

このような発展を遂げてきた放射光であるが、蓄積リング主体の放射光源は加速器の規模や電子ビームのエネルギー等によって性能が決まる。現在の放射光源はすでに性能限界に達しつつあり、今後飛躍的な性能の向上は望めそうにない。そこで、この限界を超える次世代放射光源の候補として最近注目を集めているのが、直線加速器を主体とした光源である。この光源の性能は電子銃等の入射器によってほぼ決まるため、入射器が性能限界に達するまで光源性能を向上させることができる。現在計画・建設中の直線加速器主体の光源としては、空間的にコヒーレントな光源であるX線自由電子レーザー(X-ray Free Electron LASER, XFEL) [2][3] や短パルス・超低エミッタンス光源であるエネルギー回収型ライナック(Energy Recovery Linac, ERL) 光源 [4][5] がある。

また最近ではさらに進んだ光源として、K. J. Kimらによって共振器型のX線自由電子レーザー(XFEL-O) [6]が提唱されている。現在計画・建設中のXFELは、シングルパスでレーザー発振を得るSASE型のものであり、長尺のアンジュレーターを必要とする。また、得られる光は空間的にコヒーレントであるが、時間的にはコヒーレントではない。それに対し、共振器型は光学レーザー同様に何度も鏡面反射を繰り返すことで増幅するため、より小型

の完全コヒーレント光源となる。

このXFEL-0を実現するためには、X線共振器の開発が必要不可欠である。K. J. KimらはSiやダイヤモンドといった完全結晶の背面ブラッグ反射を利用することで、共振器を構成するのに十分な反射率を得ることを提唱している。ところが、完全結晶の背面ブラッグ反射においては非常に多くの同時回折が生じる [7]。このような状況では多波回折の影響を考慮する必要がある。多波回折は反射率や、反射の際の位相・偏光の変化に影響する。

また、従来の放射光源では水平方向のエミッタンスは垂直方向の百倍以上の大きさだったため、X線結晶光学素子の散乱面は垂直面内に限られていた（例外的に水平面内に散乱面を持つX線結晶光学素子も利用されることがあるが、得られるX線強度は大幅に低下する）。それに対して、次世代光源では水平方向のエミッタンスが垂直方向と同じくらい小さくなる。そのため、X線結晶光学素子の散乱面の方向を任意に選ぶことが可能になり、設計の自由度が大いに増す。特に新たな可能性として拓かれるのが、多波回折を利用するX線光学素子である。多波回折を利用することにより、従来よりも高機能で高性能な光学素子を創れるようになる。例えば、分光器と移相子の機能を併せ持つ光学素子等である。

X線共振器開発及び次世代光源に対応した新しい光学素子の開発という二つの差し迫った理由により、X線多波回折の研究を日本で立ち上げることが急務である。本研究はX線共振器の実現を最終的な目標としたうえで、日本における多波回折研究の先駆けとなることを目的としている。

X線多波回折の研究を始めるにあたって、まずX線多波回折を利用した検光子をテーマとして取り上げることにした。X線検光子は例えばATS反射 [8][9] や磁気散乱 [10]-[12] の実験に有用である。ATS反射は電気感受率テンソルの異方性の検出を行うものである。X線領域では電気感受率の異方性が可視光領域と比べてとても小さい。電気感受率の異方性は電子分布の非等方性を反映しているので、例えば非等方であるd軌道が関わる強相関物性の研究に用いられる。電気感受率テンソルに非対角項がある場合、反射の際に偏光の変化を伴うので検光子で分析することが有用である。磁気散乱は磁性体の磁化の向きに対するX線反射強度の変化を測定することで磁気モーメントの実空間分布を求めるものであり、磁性研究に用いられる。磁気散乱も散乱の前後で偏光の変化を伴うので、検光子で分析することによりスピン磁気モーメントと軌道磁気モーメントの分離などを行える。

物性研究に有用な検光子であるが、X線領域ではこれまで45°のブラッグ反射を利用する検光子 [13][14] が用いられてきた。この検光子は取り扱いが容易であるという利点があるが、ブラッグ角が45°付近となるような特定の波長領域でしか利用できない。また、Hart-Rodriguesによって提唱された波長可変型二結晶X線偏光子 [29][30] を使用することで、波長域を広げた検光子があるが、やはり使用可能な波長領域は限られている。さらにこれらの検光子は円偏光への感度がないことから、偏光の完全決定を行えないという欠点がある。

これらの欠点を解決するために Q. Shen らは 1992 年に、多波回折を利用した検光子を開

発した [15]。彼らは多波回折を利用して蓄積リングの斜め上下方向に放射された楕円偏光放射光の偏光を測定した。一般的に、蓄積リングの斜め上下方向に放射される楕円偏光放射光の円偏光度は低い。また、この方法では偏光を自由に変えて測定することができないという問題がある。

そこで本研究では X 線移相子 [16]-[18] を用いて直線偏光の放射光を円偏光等に変換することにした。これによりほぼ完全な円偏光を生成できるだけでなく、自由に偏光の変換を行える。これは検光子の性能を詳細に調べる上で大いに有用である。また、本研究では Q. Shen らと異なる反射面、異なる波長を用いた。これは検光子を最適化し、広い波長範囲で使用可能であることを示す上で重要である。さらに、二結晶分光器の後ろにコリメーター結晶を置いて X 線ビームの単色性と平行性を向上させ、精密な光学系を組んで実験を行ったので、検光子の振る舞いを精度良く調べる事が可能となった。

多波回折による偏光決定を目指す本論文は、理論、実験・結果、考察、まとめの章に分かれている。理論の章では、まず多波回折の起きる条件について議論する。次に、従来の運動学的回折理論を多波回折にも適用できるよう拡張し、偏光決定のための式を導出する。実験・結果の章では高エネルギー加速器研究機構の放射光科学研究施設 (Photon Factory、略称 PF) のビームライン BL-14B で行った実験とその結果について述べる。また、考察の章では本研究により得られた結果の意義について考察する。最後に、まとめの章では本研究の成果をまとめる。

本研究により、多波回折を用いた偏光決定法に関していくつかの重要な知見が得られた。実用化に向けて解決すべき問題は多いが、測定時間の大幅な短縮を可能にする新たな測定法を見いだしたことは実用化への大きな一歩であると言える。

第 2 章 理論

本研究のテーマは、X線の多波回折を利用して偏光状態を決定することである。そこでこの章ではその理論について述べることにする。本章は三つの節に分かれている。まず、第 1 節では X 線結晶回折 [13][19]-[23] について概観し、従来の運動学的回折理論を多波回折にも適用できるように拡張する。次に、第 2 節では X 線の偏光状態を記述するためにポアンカレ偏光ベクトルを導入する。また、X 線領域で偏光を変換するのに広く利用されている透過型移相子について簡単に述べる。最後に、第 3 節では X 線多波回折の偏光依存性を導出し、その性質を利用して偏光決定を行えることを示す [12]。

以下の議論では、回折実験に使用する結晶として立方晶を想定する。格子定数は a とする。また、入射波は単色平面波であり、

$$\exp i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$$

に比例するものとする。ここで λ は入射波の波長である。なお本章では CGS 単位系を用いる。

2.1 X 線結晶回折理論

この節では X 線結晶回折理論について述べる。この節のおもな目的は、従来の運動学的回折理論を多波回折にも適用できるように摂動論を用いて拡張することである。この節は三つの項に分かれている。まず、第 1 項で X 線結晶回折の条件、第 2 項で X 線多波回折の条件について述べる。そして、第 3 項で従来の運動学的回折理論の多波回折への拡張を行う。

2.1.1 X 線結晶回折の条件

平面波の X 線が結晶に入射する場合を考える。このとき結晶で回折が生じるには、入射 X 線はある条件を満たさなければならない。

ブラッグ (Bragg) 条件

面指数が $(H_1 H_2 H_3)$ の格子面でブラッグ反射が生じるには

$$\lambda = 2d_{H_1 H_2 H_3} \sin \theta \quad (2.1)$$

のブラッグ条件が満たされる必要がある。ここで $d_{H_1 H_2 H_3}$ は $(H_1 H_2 H_3)$ 面の面間隔、 θ は入射角である。入射角は格子面と入射ビームのなす角である。面間隔は

$$d_{H_1 H_2 H_3} = \frac{a}{\sqrt{H_1^2 + H_2^2 + H_3^2}} \quad (2.2)$$

という式で与えられる。

$(H_1 H_2 H_3)$ 面の逆格子ベクトル \mathbf{H} は、

$$\mathbf{H} = \frac{2\pi}{a} \begin{pmatrix} H_1 \\ H_2 \\ H_3 \end{pmatrix} \quad (2.3)$$

と定義される。以後、 $(H_1 H_2 H_3)$ 面によりブラッグ反射が生じている状態を、「 $(H_1 H_2 H_3)$ 面が励起されている」、「逆格子ベクトル \mathbf{H} が励起されている」または単に「 \mathbf{H} が励起されている」と表現することにする。

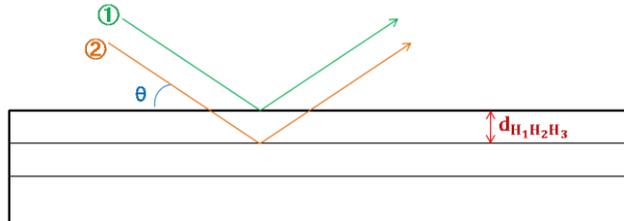


図 2.1: ブラッグ条件

①と②との光路差は、 $2d_{H_1 H_2 H_3} \sin \theta$ であり、これが波長の整数倍の時にブラッグ反射が生じる。

ラウエ (Laue) 条件

入射波の波数ベクトルを \mathbf{k}_{in} 、反射波の波数ベクトルを \mathbf{k}_{out} とすると、

$$\mathbf{k}_{out} - \mathbf{k}_{in} = \mathbf{H} \quad (2.4)$$

$$|\mathbf{k}_{in}| = |\mathbf{k}_{out}| \quad (2.5)$$

となることがブラッグ反射が生じる条件である。これをラウエ条件という。

エwald球 (Ewald sphere)

ラウエ条件はエwald球を用いることにより簡単に図示することができる (図 2.2)。エwald球とは逆格子空間内に描かれた球のことである。入射波の波数ベクトルの終点を逆格子の原点と一致するように描いたとき、この波数ベクトルの始点がエwald球の中心である。また、エwald球の半径は入射波の波数ベクトルの大きさと等しい。このエwald球上に逆格子点 \mathbf{H} が乗るときラウエ条件が成立する。

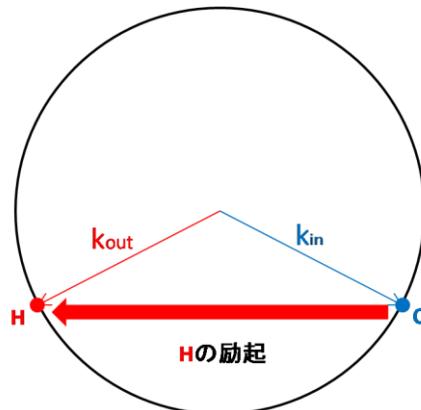


図 2.2: エwald球 この図では逆格子ベクトル \mathbf{H} が励起される様子を示している。

面心立方格子で回折が生じる条件

本研究では、面心立方格子型結晶である GaAs 結晶を実験に使用した。面心立方格子の場合、結晶がラウエ条件を満たしていても、消滅則により回折が生じない場合がある。面心立方格子で消滅則が成り立たない条件、すなわち X 線回折が生じる条件は、 H_1 、 H_2 、 H_3 の偶奇が一致することである。これ以外ではたとえラウエ条件を満たしていてもブラッグ回折は生じない。

2.1.2 X線多波回折の条件

X線が結晶に入射して回折するとき、通常、回折X線は一つしか生じない。すなわち、エワルド球上に逆格子点は一つしか乗らないことが多い。ところが、エワルド球上に逆格子点が二つ以上乗る場合も存在し、このとき回折X線は複数生じることになる。このように複数の回折X線が生じる現象のことを多波回折という。本項ではこの多波回折について議論する。

Renninger scan と多波回折

X線が結晶に入射して $H = \frac{2\pi}{a}(H_1 H_2 H_3)$ を励起する場合を考える。このとき、 $(H_1 H_2 H_3)$ 面の法線ベクトル、すなわち逆格子ベクトル H を軸とする回転のことを、「 H のまわりの方位角回転」と表現する。本論文では方位角を ϕ という記号で示すことにする。方位角回転に対して、 H は常に励起されたままである。すなわち、逆格子点 H はエワルド球上に常に乗ったままである。ところが、方位角 ϕ がある角度になると、 H とは別の逆格子点 L がエワルド球に乗ることになり、複数の反射が生じる。これが多波回折と呼ばれる現象である。なお、方位角 ϕ をスキャンしながら反射強度を測定することを Renninger scan という。

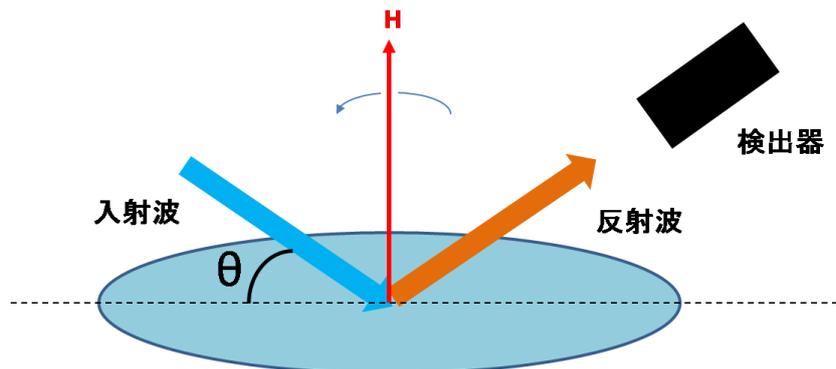


図 2.3: Renninger scan 実験の配置図

この図では、反射面は結晶表面に平行であると仮定している。

さて、逆格子点 H の他に L も励起されているとき、逆格子ベクトル $H-L$ も励起されることになる。そのため、 L による反射波がさらに $H-L$ によって反射され、最終的に検出器方向に反射波が生じる。したがって、検出器方向には二つの反射波が生じることになる。

一つはHによるブラッグ反射であり、これを主反射と呼ぶ。もう一つはLによる反射とH-Lによる反射を経由した反射であり、これを迂回反射・遠回り反射と呼ぶ。

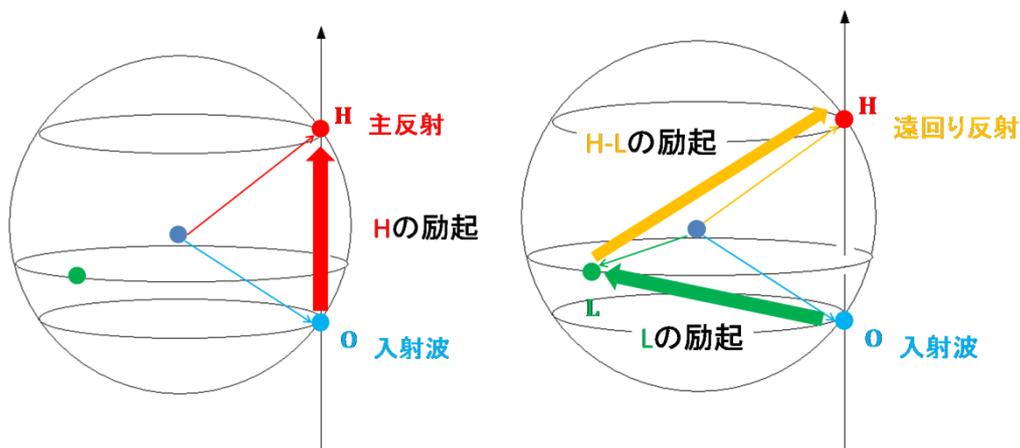


図 2.4: 主反射 (左図) と遠回り反射 (右図)

X 線多波回折の条件式

逆格子ベクトル H による主反射が生じている状態で、逆格子ベクトル L による遠回り反射が生じる条件 [20] を導出する。

H、L 及び入射波の波数ベクトルを

$$\mathbf{H} = \frac{2\pi}{a} \begin{pmatrix} H_1 \\ H_2 \\ H_3 \end{pmatrix} \quad (2.6)$$

$$\mathbf{L} = \frac{2\pi}{a} \begin{pmatrix} L_1 \\ L_2 \\ L_3 \end{pmatrix} \quad (2.7)$$

$$\mathbf{k}_0 = \begin{pmatrix} k_x \\ k_y \\ k_z \end{pmatrix} \quad (2.8)$$

とする。

波数ベクトル \mathbf{k}_0 と波長 λ の間には

$$|\mathbf{k}_0| = \frac{2\pi}{\lambda} \quad (2.9)$$

という関係が成り立つ。

ここで角度 β を図 2.5 に示すように定義する。 Π は H に垂直で原点 O を含む平面である。

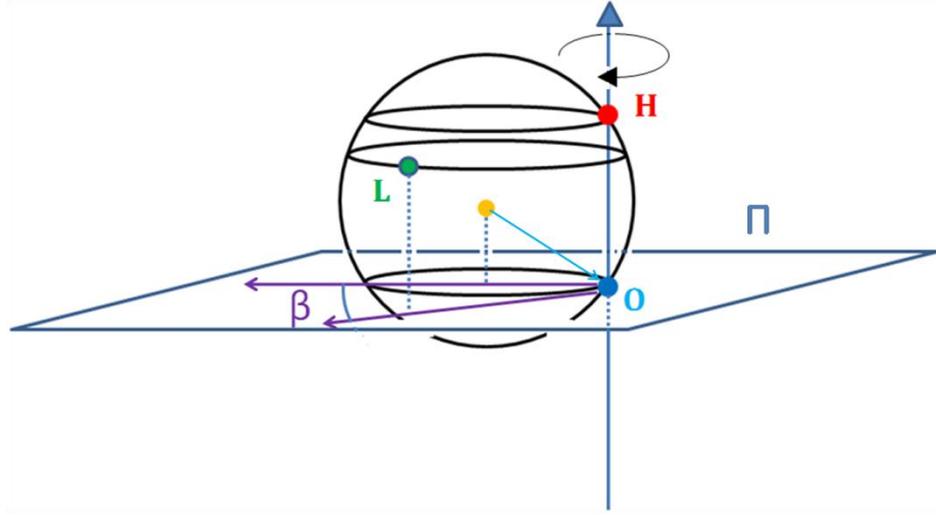


図 2.5: 角度 β と平面 Π の定義

$\mathbf{k}_{0\perp}$ 、 \mathbf{L}_{\perp} をそれぞれ \mathbf{k}_0 、 \mathbf{L} の Π への射影ベクトルとすると、

$$\cos \beta = -\frac{\mathbf{k}_{0\perp} \cdot \mathbf{L}_{\perp}}{|\mathbf{k}_{0\perp}| |\mathbf{L}_{\perp}|} \quad (2.10)$$

となる。

一方、

$$\mathbf{L}_{\perp} = \mathbf{L} - \frac{\mathbf{L} \cdot \mathbf{H}}{H^2} \mathbf{H} \quad (2.11)$$

$$\mathbf{k}_{0\perp} = \mathbf{k}_0 + \frac{\mathbf{H}}{2} \quad (2.12)$$

となることから、

$$\begin{aligned} |\mathbf{k}_{0\perp}| \cos \beta &= -\frac{\mathbf{k}_{0\perp} \cdot \mathbf{L}_{\perp}}{|\mathbf{L}_{\perp}|} \\ &= -\frac{\left(\mathbf{k}_0 + \frac{\mathbf{H}}{2}\right) \cdot \left(\mathbf{L} - \frac{\mathbf{L} \cdot \mathbf{H}}{H^2} \mathbf{H}\right)}{|\mathbf{L}_{\perp}|} \\ &= -\frac{\left(\mathbf{k}_0 + \frac{\mathbf{H}}{2}\right) \cdot \mathbf{L}}{|\mathbf{L}_{\perp}|} \end{aligned} \quad (2.13)$$

となる。

$\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{L} = -\frac{L^2}{2}$ であるから、多波回折の条件式は、

$$|\mathbf{k}_{0\perp}| \cos \beta = \frac{1}{2} \frac{L^2 - \mathbf{L} \cdot \mathbf{H}}{|\mathbf{L}_{\perp}|} \equiv K_L^H \quad (2.14)$$

と求まる。

ここで、 $|\mathbf{k}_{0\perp}|$ と $|\mathbf{L}_{\perp}|$ はそれぞれ、

$$|\mathbf{k}_{0\perp}| = \left\{ \left(\frac{2\pi}{\lambda} \right)^2 - \left(\frac{H}{2} \right)^2 \right\}^{\frac{1}{2}} \quad (2.15)$$

$$|\mathbf{L}_{\perp}| = \left\{ |\mathbf{L}|^2 - \frac{(\mathbf{L} \cdot \mathbf{H})^2}{|\mathbf{H}|^2} \right\}^{\frac{1}{2}} \quad (2.16)$$

と表される。

後に、逆格子ベクトルや波数ベクトルに対し、 $\frac{a}{2\pi}$ をかけて無次元化した表示を用いることがある。この場合、

$$|\mathbf{k}_0| = \frac{a}{\lambda} \quad (2.17)$$

$$\mathbf{H} = \begin{pmatrix} H_1 \\ H_2 \\ H_3 \end{pmatrix} \quad (2.18)$$

$$\mathbf{L} = \begin{pmatrix} L_1 \\ L_2 \\ L_3 \end{pmatrix} \quad (2.19)$$

と定義される。このときの多波回折の条件は式 2.14 と同じく

$$|\mathbf{k}_{0\perp}| \cos \beta = \frac{1}{2} \frac{L^2 - \mathbf{L} \cdot \mathbf{H}}{|\mathbf{L}_{\perp}|} \equiv K_L^H \quad (2.20)$$

となる。

ただし、

$$|\mathbf{k}_{0\perp}| = \left\{ \left(\frac{a}{\lambda} \right)^2 - \left(\frac{H}{2} \right)^2 \right\}^{\frac{1}{2}} \quad (2.21)$$

となることだけが無次元化しない場合と異なる。

多波回折が生じる特別な場合について述べる。 \mathbf{H} と \mathbf{L} の間に

$$|\mathbf{L}|^2 - \mathbf{L} \cdot \mathbf{H} = \begin{pmatrix} L_1 \\ L_2 \\ L_3 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} L_1 - H_1 \\ L_2 - H_2 \\ L_3 - H_3 \end{pmatrix} = 0 \quad (2.22)$$

という関係が成り立っているとき、多波回折の条件は

$$|\mathbf{k}_{0\perp}| = \left(\frac{a}{\lambda} \right)^2 - \left(\frac{H}{2} \right)^2 = 0 \quad (2.23)$$

または、

$$\beta = \pm 90^\circ \quad (2.24)$$

となる。

前者は、主反射がブラッグ角 90° となる条件

$$\lambda = \frac{2a}{\sqrt{H_1^2 + H_2^2 + H_3^2}} \quad (2.25)$$

を意味する。つまり、主反射のブラッグ角が 90° のとき、結晶の方位に関わらず \mathbf{L} は多波回折の条件を満たす。

後者は、 $\beta = \pm 90^\circ$ のとき、波長に関わらず L が必ず同時回折条件を満たすことを意味する。

グリッチマップ (glitch map)

Renninger scan で多波回折が生じる条件を図示したものをグリッチマップ [20] という。グリッチとは不調を意味し、本来は多波回折が生じない方位角を探すために用いられてきた。本研究では、多波回折が生じる方位角を積極的に活用するためにグリッチマップを用いた。

グリッチマップは式 2.20 から算出することができる。ここで方位角 ϕ の原点を決めるために基準ベクトル M を設定する (図 2.6 参照)。このとき多波回折が生じる方位角 ϕ_L は

$$\phi = \alpha_0 + \beta \quad (2.26)$$

となる。

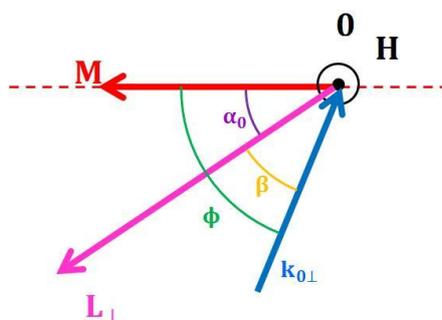


図 2.6: H に垂直な平面 Π と各ベクトルの関係

ϕ の符号については、上図のように赤い点線に関して下側に入射波の波数ベクトルの射影があるとき ϕ を正とする。 H は紙面上向きである。 H を上向きにして、結晶を時計回りに回転する方向を正回転とすることと同義である。

例として、面心立方格子結晶のグリッチマップを図 2.7、図 2.8 に示す。ここで主反射ベクトルは $H = (-2 - 2 - 2)$ (反射面としては $(\bar{2} \bar{2} \bar{2})$)、基準ベクトルは $M = (0 1 - 1)$ である。縦軸は a/λ 、横軸は結晶の方位角 ϕ を表す。縦軸を格子定数で規格化したおかげで、この図はすべての面心立方格子結晶について成り立つ。図中、異なる線は異なる L による同時回折を表す。ただし場合によっては、多波回折の線が複数重なっていることがある。

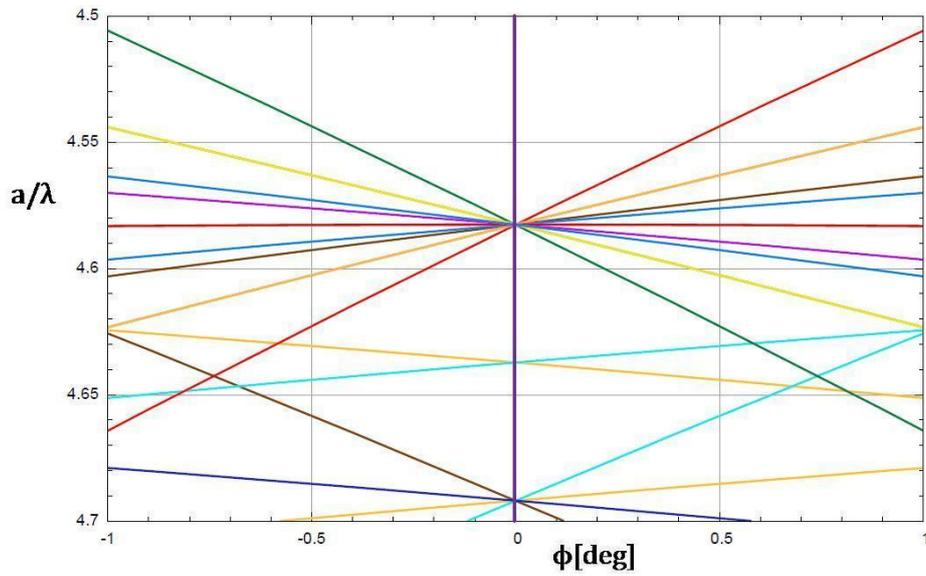


図 2.7: $\phi = 0^\circ$ 、 $a/\lambda = 4.6$ 付近のグリッチマップ

図 2.7 では、 $\phi = 0$ の線は $(0\bar{2}\bar{2})$ による線と $(\bar{2}00)$ による線が重なったものである。両線は多波回折が波長によらずに生じることを表している。

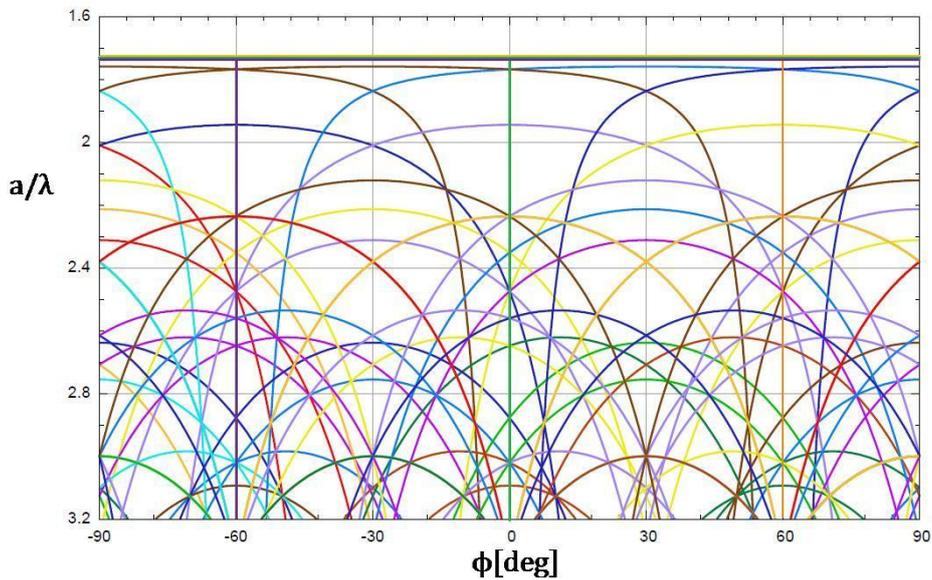


図 2.8: $-90^\circ \leq \phi \leq 90^\circ$ 、 $1.6 \leq \frac{a}{\lambda} \leq 3.2$ の領域のグリッチマップ

図 2.8 において、 $a/\lambda = 1.73$ の線は、主反射のブラッグ角が 90° のとき多波回折が必ず生じることを表している。 $a/\lambda \leq 1.73$ の領域に線が存在しない理由は、主反射が生じえないことである。

2.1.3 X線多波回折の運動学的回折理論

X線多波回折の理論には大きく分けて動力的回折理論 [21][22] と運動学的回折理論 [19] の二つがある。動力的回折理論は結晶内におけるX線の多重散乱の影響を考慮した理論であり、近似を用いないため回折現象全般にわたって正確な計算結果を与えることができる。しかし、計算に時間がかかる、物理的な見通しを得るのが難しい、等の理由により、応用するのが困難であるという問題を抱えていた。この問題を解決するために登場したのが運動学的回折理論である。運動学的回折理論では、後述するように、主反射に対して遠回り反射を摂動として取り扱う。この近似のため、運動学的回折理論は同時回折条件からわずかに外れた領域でしか成り立たない。言い換えると、同時回折条件の直近傍（遠回り反射が主反射と同程度の大きさの領域）では運動学的回折理論は成り立たない。それにもかかわらず、運動学的回折理論は簡便で物理的な見通しも立ちやすいため、様々な問題に応用することができる。例えば、本研究では多波回折を利用してX線の偏光状態を決定することを試みるが、その理論的基盤としては運動学的回折理論だけで十分である。そこで本項ではX線多波回折の運動学的回折理論について議論する。

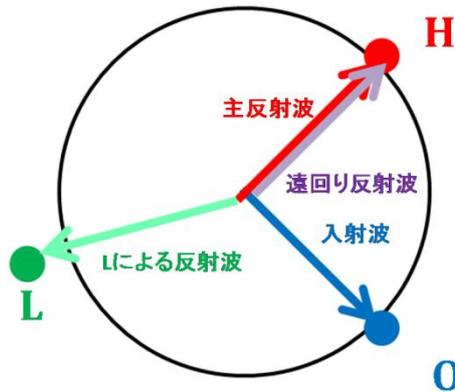


図 2.9: 多波回折条件からわずかに外れている場合

逆格子点 L がエワルド球からわずかに離れている場合にも遠回り反射が生じる。このようにときに摂動論が成り立つ。

従来のX線の運動学的回折理論では、回折X線が一つしか生じない場合について取り扱う。しかし、本研究では回折X線が複数生じる多波回折を利用するので、従来の運動学的回折理論を多波回折にも適用できるよう拡張する必要がある。この拡張にあたっては、主反射に対して遠回り反射を摂動とみなす近似を用いる。そのため、本節で述べる理論は多波回折条件からわずかに離れた領域（図 2.9 参照）でのみ成り立ち、多波回折条件の直近傍（遠回り反射が主反射と同程度の大きさの領域）では成り立たない。この制約にもかかわらず、本研究では多波回折条件からわずかに離れた領域を利用して偏光解析を行うため、

この理論を適用することができる。以下では、電子によるトムソン散乱に起因する回折現象を取り扱うものとする。なお、古典電子半径 r_e 、無次元数 Γ を次のように定義する。

$$r_e \equiv \frac{e^2}{mc^2} = 2.818 \times 10^{-15} \text{m} \quad (2.27)$$

$$\Gamma \equiv \frac{r_e \lambda^2}{\pi V_c} \quad (2.28)$$

ここで V_c は単位胞の体積であり、立方晶の場合

$$V_c = a^3 \quad (2.29)$$

である。

X線に対する結晶の誘電率

X線に対する結晶の誘電率を求めるために、ここではローレンツモデルを用いる。なお、結晶は非磁性体であるとする。

X線が結晶に入射すると、結晶内の電子（質量 m 、電荷 $-e$ ）はX線の電場によって強制振動させられる。X線の作る電場を $\mathbf{E}(t) = \mathbf{E}_0 e^{i\omega t}$ 、電子の平衡位置からのずれを \mathbf{x} 、復元力と減衰力をそれぞれ $-m\omega_0^2 \mathbf{x}$ 、 $-m\Gamma \dot{\mathbf{x}}$ とすると、電子の運動方程式は

$$m\ddot{\mathbf{x}} + m\Gamma \dot{\mathbf{x}} + m\omega_0^2 \mathbf{x} = -e\mathbf{E}_0 e^{i\omega t} \quad (2.30)$$

となる。

この運動方程式の $\mathbf{x} = \mathbf{x}_0 e^{-i\omega t}$ の形の解は

$$\mathbf{x}_0 = -\frac{e\mathbf{E}_0}{m} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega} = -\frac{e\mathbf{E}_0}{m} \frac{(\omega_0^2 - \omega^2) + i\Gamma\omega}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + (\Gamma\omega)^2} \quad (2.31)$$

である。

ここで電子密度を $\rho(\mathbf{r})$ とすると、分極は、

$$\begin{aligned} \mathbf{P}(\mathbf{r}, t) &= -e\rho(\mathbf{r})\mathbf{x}(t) \\ &= \rho(\mathbf{r}) \frac{e^2 \mathbf{E}_0}{m} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega} e^{i\omega t} \end{aligned} \quad (2.32)$$

となる。

電子一つが作る電気双極子の大きさは、

$$\mathbf{p}(t) = -e\mathbf{x}(t) = \frac{e^2 \mathbf{E}_0}{m} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega} e^{i\omega t} \quad (2.33)$$

である。

電束密度と分極は、誘電率を $\epsilon(\mathbf{r}')$ とすると、

$$\mathbf{D} = \mathbf{E} + 4\pi\mathbf{P} = \epsilon(\mathbf{r})\mathbf{E} \quad (2.34)$$

$$\mathbf{P} = \frac{1}{4\pi} (\epsilon(\mathbf{r}) - 1) \mathbf{E} \quad (2.35)$$

と表される。

したがって、

$$\epsilon(\mathbf{r}) = 1 + \rho(\mathbf{r}) \frac{4\pi e^2}{m} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega} \quad (2.36)$$

となる。

X線領域では、入射エネルギー $\hbar\omega$ が十分大きいので、 $\omega_0 = 0$ 、 $\Gamma = 0$ と見なすことができ、

$$\epsilon(\mathbf{r}) = 1 - \rho(\mathbf{r}) \frac{4\pi e^2}{m} \frac{1}{\omega^2} \quad (2.37)$$

となる。

入射波の形が $\exp i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$ であることから、結晶構造因子 $F_{\mathbf{H}}$ は、

$$F_{\mathbf{H}} = \int_{\text{単位構造}} d\mathbf{r} \rho(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{H} \cdot \mathbf{r}} \quad (2.38)$$

と定義される。

結晶構造因子を用いると電子密度は、

$$\rho(\mathbf{r}) = \frac{1}{V_c} \sum_{\text{逆格子点}\mathbf{H}} F_{\mathbf{H}} e^{-i\mathbf{H} \cdot \mathbf{r}} \quad (2.39)$$

で与えられるから、誘電率は、

$$\epsilon(\mathbf{r}) = 1 - \Gamma \sum_{\mathbf{H}} F_{\mathbf{H}} e^{-i\mathbf{H} \cdot \mathbf{r}} \quad (2.40)$$

となる。

電束密度の自己無撞着方程式の導出

真電荷、真電流が存在しないときのマクスウェル方程式は、

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = 0 \quad (2.41)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (2.42)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \quad (2.43)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} \quad (2.44)$$

である。

電場 \mathbf{E} と電束密度 \mathbf{D} の関係式は、

$$\mathbf{D} = \epsilon(\mathbf{r}) \mathbf{E} \quad (2.45)$$

である。

一方、結晶が非磁性体であるという仮定から、

$$\mathbf{B} = \mathbf{H} \quad (2.46)$$

である。

式 2.43 と式 2.44 より、

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) = -\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{D}}{\partial t^2} = k_0^2 \mathbf{D} \quad (2.47)$$

となる。

一方、ベクトル関係式と式 2.41 より、

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{D}) = \nabla(\nabla \cdot \mathbf{D}) - \nabla^2 \mathbf{D} = -\nabla^2 \mathbf{D} \quad (2.48)$$

であり、したがって式 2.47 から式 2.48 をひくことにより、

$$(\nabla^2 + k_0^2) \mathbf{D} = \nabla \times \{\nabla \times (\mathbf{E} - \mathbf{D})\} \quad (2.49)$$

が成り立つ。

ここで、 $\delta\epsilon(\mathbf{r})$ を

$$\delta\epsilon(\mathbf{r}) \equiv \epsilon(\mathbf{r}) - 1 \quad (2.50)$$

と定義すると、

$$(\nabla^2 + k_0^2) \mathbf{D} = -\nabla \times (\nabla \times \delta\epsilon \mathbf{E}) \quad (2.51)$$

となる。さらに、

$$\delta\epsilon \ll 1 \quad (2.52)$$

という近似を使用すると、

$$(\nabla^2 + k_0^2) \mathbf{D} = -\nabla \times (\nabla \times \delta\epsilon \mathbf{D}) \quad (2.53)$$

となる。

以下、 $e^{i\omega t}$ は省略する。

以上より、結晶内外に形成される電束密度についての基礎方程式は、

$(\nabla^2 + k_0^2) \mathbf{D} = -\nabla \times (\nabla \times \delta\epsilon \mathbf{D})$	(2.54)
--------------------------------------------------------------------------------------------	--------

となる。

ここで、

$$\delta\epsilon(\mathbf{r}) = \begin{cases} -\Gamma \sum_{\mathbf{H}} F_{\mathbf{H}} e^{-i\mathbf{H} \cdot \mathbf{r}} & (\text{結晶中}) \\ 0 & (\text{結晶外}) \end{cases} \quad (2.55)$$

である。

2.54 の同次方程式 $(\nabla^2 + k_0^2) \mathbf{D} = \mathbf{0}$ の解は、

$$\mathbf{D}^{(0)}(\mathbf{r}) = \mathbf{D}_0 e^{-ik_0 \cdot \mathbf{r}} \quad (2.56)$$

である。

2.54 に対応するグリーン関数の方程式

$$(\nabla^2 + k_0^2) G = -\delta(\mathbf{r}) \quad (2.57)$$

の特解のうち、遅延グリーン関数に対応するものは、

$$G(\mathbf{r}) = \frac{e^{-ik_0 |\mathbf{r}|}}{4\pi |\mathbf{r}|} \quad (2.58)$$

である（導出は付録 A 参照）。これより、2.54 の特解は、

$$\begin{aligned} \mathbf{D}(\mathbf{r}) &= \nabla \times (\nabla \times \delta\epsilon \mathbf{D}) \otimes \mathbf{G} \\ &= \int_{\text{全空間}} d\mathbf{r}' \frac{e^{-ik_0|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|}}{4\pi|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|} \nabla' \times (\nabla' \times \delta\epsilon(\mathbf{r}') \mathbf{D}(\mathbf{r}')) \end{aligned} \quad (2.59)$$

すなわち、

$$\mathbf{D}(\mathbf{r}) = \int_{\text{結晶中}} d\mathbf{r}' \frac{e^{-ik_0|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|}}{4\pi|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|} \nabla' \times \left(\nabla' \times \left[-\Gamma \sum_{\mathbf{H}} F_{\mathbf{H}} e^{-i\mathbf{H}\cdot\mathbf{r}'} \right] \mathbf{D}(\mathbf{r}') \right) \quad (2.60)$$

という自己無撞着方程式を満たす。

したがって、一般解は、

$$\mathbf{D}(\mathbf{r}) = \mathbf{D}^{(0)} + \int_{\text{結晶中}} d\mathbf{r}' \frac{e^{-ik_0|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|}}{4\pi|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|} \nabla' \times \left(\nabla' \times \left[-\Gamma \sum_{\mathbf{H}} F_{\mathbf{H}} e^{-i\mathbf{H}\cdot\mathbf{r}'} \right] \mathbf{D}(\mathbf{r}') \right) \quad (2.61)$$

という自己無撞着方程式を満たす。

これを基礎方程式として、多波回折の数値解析を行う。すなわち、

$$\mathbf{D} = \mathbf{D}^{(0)} + \mathbf{D}^{(1)} + \dots \quad (2.62)$$

$$\mathbf{D}^{(i+1)} = \int_{\text{結晶中}} d\mathbf{r}' \frac{e^{-ik_0|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|}}{4\pi|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|} \nabla' \times \left(\nabla' \times \left[-\Gamma \sum_{\mathbf{H}} F_{\mathbf{H}} e^{-i\mathbf{H}\cdot\mathbf{r}'} \right] \mathbf{D}^{(i)}(\mathbf{r}') \right) \quad (i = 0, 1, \dots) \quad (2.63)$$

として、自己無撞着方程式を逐次近似で解いた結果が摂動論である。

$\mathbf{D}^{(1)}$ の項 (Born 近似の項)

まず $\mathbf{D}^{(1)}$ の項を計算する。この項までを考えることは、Born 近似に相当する。

$$\begin{aligned} \mathbf{D}^{(1)} &= \int_{\text{結晶中}} d\mathbf{r}' \frac{e^{-ik_0|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|}}{4\pi|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|} \nabla' \times \left(\nabla' \times \left[-\Gamma \sum_{\mathbf{H}} F_{\mathbf{H}} e^{-i\mathbf{H}\cdot\mathbf{r}'} \right] \mathbf{D}^{(0)}(\mathbf{r}') \right) \\ &= \int_{\text{結晶中}} d\mathbf{r}' \frac{e^{-ik_0|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|}}{4\pi|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|} \nabla' \times \left(\nabla' \times \left[-\Gamma \sum_{\mathbf{H}} F_{\mathbf{H}} e^{-i\mathbf{H}\cdot\mathbf{r}'} \right] \mathbf{D}_0 e^{-i\mathbf{k}_0\cdot\mathbf{r}'} \right) \\ &\simeq \frac{\Gamma e^{-ik_0r}}{4\pi r} \sum_{\mathbf{H}} F_{\mathbf{H}} \int_{\text{結晶中}} d\mathbf{r}' e^{i\mathbf{k}_0\mathbf{r}'\cdot\hat{\mathbf{r}}} (\mathbf{k}_0 + \mathbf{H}) \times [(\mathbf{k}_0 + \mathbf{H}) \times \mathbf{D}_0 e^{-i(\mathbf{k}_0+\mathbf{H})\cdot\mathbf{r}'}] \\ &= \frac{\Gamma e^{-ik_0r}}{4\pi r} \sum_{\mathbf{H}} F_{\mathbf{H}} \times (\text{結晶体積}) \times \delta_{\mathbf{0}, \mathbf{k}_0\hat{\mathbf{r}}-\mathbf{k}_0-\mathbf{H}} (\mathbf{k}_0 + \mathbf{H}) \times [(\mathbf{k}_0 + \mathbf{H}) \times \mathbf{D}_0] \end{aligned} \quad (2.64)$$

式を展開するとき、結晶が原点付近に局在し、観測点が遠方にあるという近似

$$|\mathbf{r} - \mathbf{r}'| \simeq r \left(1 + \frac{\mathbf{r}'\cdot\hat{\mathbf{r}}}{r} \right) \quad (2.65)$$

$$|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|^{-1} \simeq r^{-1} \quad (2.66)$$

を用いた。

ここで、 $k_0 \hat{\mathbf{r}} - \mathbf{k}_0 - \mathbf{H} = \mathbf{0}$ の場合を考える。 $\mathbf{k}_0 + \mathbf{H} = \mathbf{k}_H$ とおくと、これは \mathbf{k}_H の方向から観測したことに相当する。

このとき、 V を結晶体積、 N を結晶中の単位胞の数として、

$$\begin{aligned} \mathbf{D}^{(1)} &= \frac{\Gamma e^{-ik_0 r}}{4\pi r} F_H V k_0^2 \hat{\mathbf{r}} \times (\hat{\mathbf{r}} \times \mathbf{D}_0) \\ &= \frac{r_e e^{-ik_0 r}}{r} F_H \frac{V}{V_c} \hat{\mathbf{r}} \times (\hat{\mathbf{r}} \times \mathbf{D}_0) \\ &= \frac{N r_e F_H e^{-ik_0 r}}{r} \hat{\mathbf{r}} \times (\hat{\mathbf{r}} \times \mathbf{D}_0) \end{aligned} \quad (2.67)$$

となる。ただし、この $\mathbf{D}^{(1)}$ は、結晶から十分離れたところでの値である。

$$\mathbf{D}^{(1)} = \frac{N r_e F_H e^{-ik_0 r}}{r} \hat{\mathbf{r}} \times (\hat{\mathbf{r}} \times \mathbf{D}_0) \quad (2.68)$$

以下では、 $|\mathbf{k}_H| = k_0$ すなわち、逆格子点 \mathbf{H} がエワルド球に乗っている状況を考える。また、観測方向 $\hat{\mathbf{r}}$ は、 \mathbf{k}_H の方向であるとする。すなわち、

$$k_0 \hat{\mathbf{r}} = \mathbf{k}_H \quad (2.69)$$

であるとする。他の逆格子点はエワルド球から離れているものとする。

$\mathbf{D}^{(2)}$ の項

本研究では、この項までを考慮する。

$\mathbf{D}^{(2)}$ を導出するにあたっては、遠方における $\mathbf{D}^{(1)}$ ではなく、結晶の近傍における $\mathbf{D}^{(1)}$ を逐次方程式に代入する。

$$\mathbf{D}^{(2)} = \int_{\text{結晶中}} d\mathbf{r}' \frac{e^{-ik_0|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|}}{4\pi|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|} \nabla' \times \left(\nabla' \times \left[-\Gamma \sum_{\mathbf{G}} F_{\mathbf{G}} e^{-i\mathbf{G}\cdot\mathbf{r}'} \right] \mathbf{D}^{(1)}(\mathbf{r}') \right) \quad (2.70)$$

に対して、2.65、2.66 の近似を使用すると、

$$\begin{aligned} \mathbf{D}^{(2)} &\simeq \frac{e^{-ik_0 r}}{4\pi r} \int_{\text{結晶中}} d\mathbf{r}' e^{ik_0 \mathbf{r}' \cdot \hat{\mathbf{r}}} \nabla' \times \left(\nabla' \times \left[-\Gamma \sum_{\mathbf{G}} F_{\mathbf{G}} e^{-i\mathbf{G}\cdot\mathbf{r}'} \right] \mathbf{D}^{(1)}(\mathbf{r}') \right) \\ &= \frac{e^{-ik_0 r}}{4\pi r} \int_{\text{結晶中}} d\mathbf{r}' e^{ik_0 \mathbf{r}' \cdot \hat{\mathbf{r}}} \nabla' \times \left\{ \nabla' \times \left[-\Gamma \sum_{\mathbf{G}} F_{\mathbf{G}} e^{-i\mathbf{G}\cdot\mathbf{r}'} \right] \int_{\text{結晶中}} d\mathbf{r}'' \frac{e^{-ik_0|\mathbf{r}'-\mathbf{r}''|}}{4\pi|\mathbf{r}'-\mathbf{r}''|} \nabla'' \times \left(\nabla'' \times \left[-\Gamma \sum_{\mathbf{L}} F_{\mathbf{L}} e^{-i\mathbf{L}\cdot\mathbf{r}''} \right] \mathbf{D}_0 e^{-ik_0 \cdot \mathbf{r}''} \right) \right\} \end{aligned} \quad (2.71)$$

となる。式を展開するとき、 $|\mathbf{r}'|$ と $|\mathbf{r}''|$ は同程度（結晶の大きさ程度）であることから、

$\frac{e^{-ik_0|\mathbf{r}'-\mathbf{r}''|}}{4\pi|\mathbf{r}'-\mathbf{r}''|}$ について同様の近似を行うことは許されない。そこで、式を展開する手段として、

$\frac{e^{-ik_0|\mathbf{r}|}}{4\pi|\mathbf{r}|}$ をフーリエ展開する（導出は付録 A 参照）。

$$\frac{e^{-ik_0|r|}}{4\pi|r|} = \frac{1}{(2\pi)^3} \int_{\Omega_{\mathbf{k}}} d\mathbf{k} \frac{e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}}{k^2 - k_0^2} \quad (2.72)$$

$$\frac{1}{k^2 - k_0^2} = \int_{\Omega} d\mathbf{r} \frac{e^{-ik_0|r|}}{4\pi|r|} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \quad (2.73)$$

このフーリエ展開を利用すると、

$$\begin{aligned} \mathbf{D}^{(2)} &\simeq \frac{e^{-ik_0r}}{4\pi r} \int_{\text{結晶中}} d\mathbf{r}' e^{ik_0\mathbf{r}'\cdot\hat{\mathbf{r}}} \nabla' \times \left\{ \nabla' \times \left[-\Gamma \sum_{\mathbf{G}} F_{\mathbf{G}} e^{-i\mathbf{G}\cdot\mathbf{r}'} \right] \int_{\text{結晶中}} d\mathbf{r}'' \frac{e^{-ik_0|\mathbf{r}'-\mathbf{r}''|}}{4\pi|\mathbf{r}'-\mathbf{r}''|} \nabla'' \times \left(\nabla'' \times \left[-\Gamma \sum_{\mathbf{L}} F_{\mathbf{L}} e^{-i\mathbf{L}\cdot\mathbf{r}''} \right] \mathbf{D}_0 e^{-ik_0\mathbf{r}''} \right) \right\} \\ &= \frac{e^{-ik_0r}}{4\pi r} \int_{\text{結晶中}} d\mathbf{r}' e^{ik_0\mathbf{r}'\cdot\hat{\mathbf{r}}} \nabla' \\ &\quad \times \left\{ \nabla' \times \left[-\Gamma \sum_{\mathbf{G}} F_{\mathbf{G}} e^{-i\mathbf{G}\cdot\mathbf{r}'} \right] \int_{\text{結晶中}} d\mathbf{r}'' \frac{1}{(2\pi)^3} \int_{\Omega_{\mathbf{k}}} d\mathbf{k} \frac{e^{-i\mathbf{k}\cdot(\mathbf{r}'-\mathbf{r}'')}}{k^2 - k_0^2} \nabla'' \times \left(\nabla'' \times \left[-\Gamma \sum_{\mathbf{L}} F_{\mathbf{L}} e^{-i\mathbf{L}\cdot\mathbf{r}''} \right] \mathbf{D}_0 e^{-ik_0\mathbf{r}''} \right) \right\} \\ &= \frac{\Gamma^2 e^{-ik_0r}}{4\pi r} \int_{\text{結晶中}} d\mathbf{r}' e^{ik_0\mathbf{r}'\cdot\hat{\mathbf{r}}} \sum_{\mathbf{G}} \left\{ F_{\mathbf{G}} e^{-i\mathbf{G}\cdot\mathbf{r}'} \int_{\text{結晶中}} d\mathbf{r}'' \frac{1}{(2\pi)^3} \int_{\Omega_{\mathbf{k}}} d\mathbf{k} \frac{e^{-i\mathbf{k}\cdot(\mathbf{r}'-\mathbf{r}'')}}{k^2 - k_0^2} (\mathbf{G} + \mathbf{k}) \times (\mathbf{G} + \mathbf{k}) \right. \\ &\quad \left. \times \left[\sum_{\mathbf{L}} F_{\mathbf{L}} e^{-i\mathbf{L}\cdot\mathbf{r}''} (\mathbf{L} + \mathbf{k}_0) \times (\mathbf{L} + \mathbf{k}_0) \times \mathbf{D}_0 e^{-ik_0\mathbf{r}''} \right] \right\} \\ &= \frac{\Gamma^2 e^{-ik_0r}}{4\pi r} \int_{\text{結晶中}} d\mathbf{r}' e^{ik_0\mathbf{r}'\cdot\hat{\mathbf{r}}} \sum_{\mathbf{G}} \left\{ F_{\mathbf{G}} e^{-i\mathbf{G}\cdot\mathbf{r}'} \int_{\Omega_{\mathbf{k}}} d\mathbf{k} \frac{e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}'}}{k^2 - k_0^2} (\mathbf{G} + \mathbf{k}) \times (\mathbf{G} + \mathbf{k}) \right. \\ &\quad \left. \times \left[\sum_{\mathbf{L}} F_{\mathbf{L}} (\mathbf{L} + \mathbf{k}_0) \times (\mathbf{L} + \mathbf{k}_0) \times \mathbf{D}_0 \delta(\mathbf{k} - \mathbf{L} - \mathbf{k}_0) \right] \right\} \end{aligned} \quad (2.74)$$

となる。

ここで、 $\mathbf{k}_{\mathbf{L}} \equiv \mathbf{k}_0 + \mathbf{L}$ と定義すると、

$$\begin{aligned} \mathbf{D}^{(2)} &\simeq \frac{\Gamma^2 e^{-ik_0r}}{4\pi r} \int_{\text{結晶中}} d\mathbf{r}' e^{ik_0\mathbf{r}'\cdot\hat{\mathbf{r}}} \sum_{\mathbf{G}} \left\{ F_{\mathbf{G}} e^{-i\mathbf{G}\cdot\mathbf{r}'} \int_{\Omega_{\mathbf{k}}} d\mathbf{k} \frac{e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}'}}{k^2 - k_0^2} (\mathbf{G} + \mathbf{k}) \times (\mathbf{G} + \mathbf{k}) \right. \\ &\quad \left. \times \left[\sum_{\mathbf{L}} F_{\mathbf{L}} \mathbf{k}_{\mathbf{L}} \times \mathbf{k}_{\mathbf{L}} \times \mathbf{D}_0 \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}_{\mathbf{L}}) \right] \right\} \\ &= \frac{\Gamma^2 e^{-ik_0r}}{4\pi r} \int_{\text{結晶中}} d\mathbf{r}' e^{ik_0\mathbf{r}'\cdot\hat{\mathbf{r}}} \sum_{\mathbf{G}} \left\{ F_{\mathbf{G}} e^{-i\mathbf{G}\cdot\mathbf{r}'} \left[\sum_{\mathbf{L}} \frac{e^{-i\mathbf{k}_{\mathbf{L}}\cdot\mathbf{r}'}}{k_{\mathbf{L}}^2 - k_0^2} F_{\mathbf{L}} (\mathbf{G} + \mathbf{k}_{\mathbf{L}}) \times (\mathbf{G} + \mathbf{k}_{\mathbf{L}}) \times \mathbf{k}_{\mathbf{L}} \times \mathbf{k}_{\mathbf{L}} \times \mathbf{D}_0 \right] \right\} \\ &= \frac{\Gamma^2 e^{-ik_0r}}{4\pi r} \sum_{\mathbf{G}} \left\{ F_{\mathbf{G}} \left[\sum_{\mathbf{L}} \frac{V \delta_{\mathbf{0}, \mathbf{k}_0 \hat{\mathbf{r}} - \mathbf{G} - \mathbf{k}_{\mathbf{L}}}}{k_{\mathbf{L}}^2 - k_0^2} F_{\mathbf{L}} (\mathbf{G} + \mathbf{k}_{\mathbf{L}}) \times (\mathbf{G} + \mathbf{k}_{\mathbf{L}}) \times \mathbf{k}_{\mathbf{L}} \times \mathbf{k}_{\mathbf{L}} \times \mathbf{D}_0 \right] \right\} \end{aligned} \quad (2.75)$$

となる。ここで、逆格子点 \mathbf{H} がエwald球に乗っているという仮定を用いると、

$$\mathbf{k}_0 \hat{\mathbf{r}} - \mathbf{G} - \mathbf{k}_{\mathbf{L}} = \mathbf{H} - \mathbf{G} - \mathbf{L} = \mathbf{0} \quad (2.76)$$

のときのみ上式は値を持つことから、

$$\begin{aligned} \mathbf{D}^{(2)} &\simeq \frac{V \Gamma^2 e^{-ik_0r}}{4\pi r} \sum_{\mathbf{G}, \mathbf{L}, \mathbf{G} + \mathbf{L} = \mathbf{H}} F_{\mathbf{G}} F_{\mathbf{L}} \frac{1}{k_{\mathbf{L}}^2 - k_0^2} \mathbf{k}_{\mathbf{H}} \times \mathbf{k}_{\mathbf{H}} \times \mathbf{k}_{\mathbf{L}} \times \mathbf{k}_{\mathbf{L}} \times \mathbf{D}_0 \\ &= \frac{k_0^2 \Gamma^2 V e^{-ik_0r}}{4\pi r} \sum_{\mathbf{L}} F_{\mathbf{H}-\mathbf{L}} F_{\mathbf{L}} \frac{1}{k_{\mathbf{L}}^2 - k_0^2} \hat{\mathbf{r}} \times \hat{\mathbf{r}} \times \mathbf{k}_{\mathbf{L}} \times \mathbf{k}_{\mathbf{L}} \times \mathbf{D}_0 \end{aligned} \quad (2.77)$$

$$\mathbf{D}^{(2)} = \frac{\Gamma N r_e e^{-ik_0 r}}{r} \sum_{\mathbf{L}} F_{\mathbf{H}-\mathbf{L}} F_{\mathbf{L}} \frac{1}{k_{\mathbf{L}}^2 - k_0^2} \hat{\mathbf{f}} \times \hat{\mathbf{f}} \times \mathbf{k}_{\mathbf{L}} \times \mathbf{k}_{\mathbf{L}} \times \mathbf{D}_0 \quad (2.78)$$

$$\mathbf{L} \neq \mathbf{0}, \mathbf{H} \quad (2.79)$$

という結果が得られる。上式の \mathbf{L} に対する条件 (2.79) は、入射方向への散乱、すなわち前方散乱を考慮しないことによる。これにより、 $\mathbf{D}^{(2)}$ は発散しない。

$\mathbf{D}^{(2)}$ の項までのまとめ

以上の結果をまとめると、逆格子点 \mathbf{H} がエワルド球にのっているとき、 $\mathbf{k}_{\mathbf{H}}$ の方向で回折波を観測すると、観測される電束密度は、

$$\begin{aligned} \mathbf{D} &\simeq \mathbf{D}^{(1)} + \mathbf{D}^{(2)} \\ &= N r_e \frac{e^{-ik_0 r}}{r} \hat{\mathbf{f}} \times \left\{ \hat{\mathbf{f}} \times \left[F_{\mathbf{H}} \mathbf{D}_0 + \Gamma \sum_{\mathbf{L}} F_{\mathbf{H}-\mathbf{L}} F_{\mathbf{L}} \frac{1}{k_{\mathbf{L}}^2 - k_0^2} \mathbf{k}_{\mathbf{L}} \times \mathbf{k}_{\mathbf{L}} \times \mathbf{D}_0 \right] \right\} \quad (2.80) \end{aligned}$$

となる。物理的には $\mathbf{D}^{(1)}$ は主反射波、 $\mathbf{D}^{(2)}$ は遠回り反射波を表す。

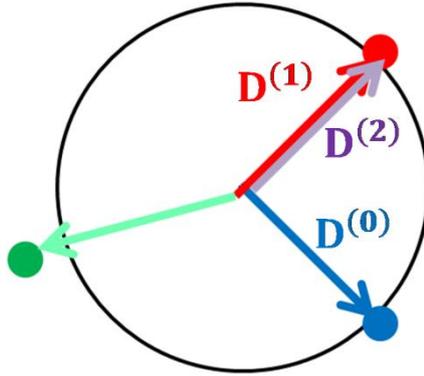


図 2.10: $\mathbf{D}^{(0)}$ 、 $\mathbf{D}^{(1)}$ 、 $\mathbf{D}^{(2)}$ の物理的意味
 $\mathbf{D}^{(0)}$ は入射波を表す。

$\mathbf{D}^{(N)}$ の項

逆格子点 \mathbf{H} がエワルド球にのっているとき、 $\mathbf{k}_{\mathbf{H}}$ の方向で回折光を観測すると、観測される電束密度の N 次の項は

$$\begin{aligned} \mathbf{D}^{(N)} &\simeq \frac{\Gamma^{N-1} N r_e e^{-ik_0 r}}{r} \sum_{\mathbf{L}_1, \mathbf{L}_2, \dots, \mathbf{L}_{N-1}} F_{\mathbf{H}-\mathbf{L}_1-\mathbf{L}_2-\dots-\mathbf{L}_{N-1}} F_{\mathbf{L}_1} F_{\mathbf{L}_2} \dots F_{\mathbf{L}_{N-1}} \frac{1}{k_{\mathbf{L}_1+\mathbf{L}_2+\dots+\mathbf{L}_{N-1}}^2 - k_0^2} \dots \frac{1}{k_{\mathbf{L}_{N-1}}^2 - k_0^2} \hat{\mathbf{f}} \\ &\times \hat{\mathbf{f}} \times \mathbf{k}_{\mathbf{L}_1+\mathbf{L}_2+\dots+\mathbf{L}_{N-1}} \times \mathbf{k}_{\mathbf{L}_1+\mathbf{L}_2+\dots+\mathbf{L}_{N-1}} \times \dots \times \mathbf{k}_{\mathbf{L}_{N-2}+\mathbf{L}_{N-1}} \times \mathbf{k}_{\mathbf{L}_{N-2}+\mathbf{L}_{N-1}} \times \mathbf{k}_{\mathbf{L}_{N-1}} \times \mathbf{k}_{\mathbf{L}_{N-1}} \times \mathbf{D}_0 \end{aligned} \quad (2.81)$$

となる。

摂動論の適用範囲

摂動論が適用できるのは

$$|\mathbf{D}^{(1)}| \gg |\mathbf{D}^{(2)}| \quad (2.82)$$

が成り立つ範囲内である。多波回折条件の直近傍、すなわち H 以外の逆格子点がエワルド球の直近にある場合、 $|\mathbf{D}^{(2)}|$ は $|\mathbf{D}^{(1)}|$ の大きさに近づくため、摂動論を適用することはできない。

2.2 偏光

本研究の目的は、X線の偏光状態を多波回折を利用して決定することである。そのため、後の議論では偏光に関する議論が重要な地位を占める。そこで後の議論を理解する助けとして、この節ではまず偏光の一般的な表現方法について述べることにする [22]。

また、本研究では垂直偏光の放射光をX線移相子により円偏光や水平偏光等に変換する。そこで、X線領域で広く利用されているX線透過型移相子 [16]-[18] の基本についても簡単に紹介する。

2.2.1 偏光の表現方法について

一般的に、光の偏光状態を記述するためにストークス・パラメータやポアンカレ偏光ベクトルがよく利用される。そこでこの項ではポアンカレ偏光ベクトルについて簡単に説明する。なお、式中で $\{M\}$ のように波括弧を使って行列を表すことがある。また、ブラケット $\langle \rangle$ は、時間平均を表す。

σ 偏光と π 偏光の定義

可視光領域では s 偏光、 p 偏光という言葉がよく利用されるが、X線領域では σ 偏光、 π 偏光という言葉が一般的に利用されている。いま、入射ベクトルと散乱ベクトルの張る平面（散乱面）を考えることにする。このとき、散乱面に対して垂直な電場成分を σ 偏光成分、平行な電場成分を π 偏光成分という（図 2.11）。

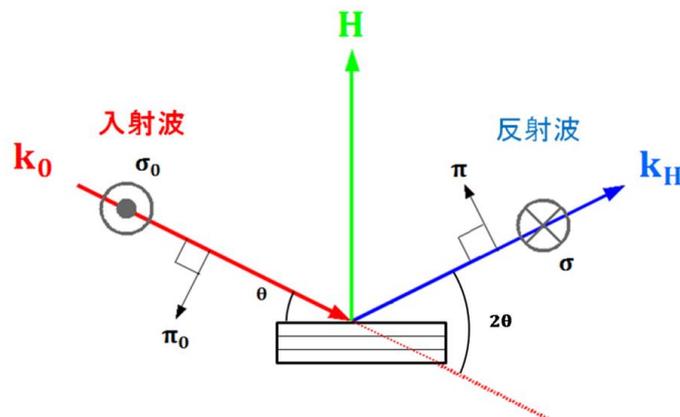


図 2.11: 散乱面と σ 偏光、 π 偏光の関係

θ はブラッグ角を表す。 σ 偏光は紙面垂直方向の偏光成分、 π 偏光は散乱面内の偏光成分。

ストークス・パラメータとポアンカレ偏光ベクトルの定義

いま、入射電場を

$$\mathbf{D}_0 = D_{0\sigma}\boldsymbol{\sigma}_0 + D_{0\pi}\boldsymbol{\pi}_0 = \begin{pmatrix} D_{0\sigma} \\ D_{0\pi} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} D_{0\sigma} \\ D_{0\pi}e^{i\delta} \end{pmatrix} \quad (2.83)$$

とベクトルで表記することにする。ここで $\boldsymbol{\sigma}_0$ は σ 偏光成分に対応する単位ベクトル、 $\boldsymbol{\pi}_0$ は π 偏光成分に対応する単位ベクトルである。 $D_{0\sigma}$ 、 $D_{0\pi}$ はいずれも $Ae^{i(\omega t - kz)}$ の形である。 $D_{0\sigma}$ 、 $D_{0\pi}$ の振幅に時間的ゆらぎがあってもよいものとする。進行方向の単位ベクトルを \mathbf{z} とする。 $\boldsymbol{\sigma}_0$ 、 $\boldsymbol{\pi}_0$ 、 \mathbf{z} は右手系をなすものとする。

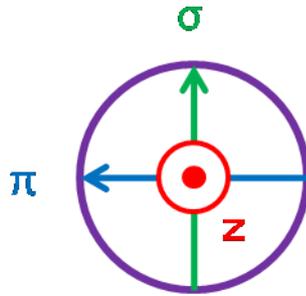


図 2.12: $\boldsymbol{\sigma}_0$ 、 $\boldsymbol{\pi}_0$ 、 \mathbf{z} の 3 ベクトル

偏光を記述するに当たり、 $\begin{pmatrix} D_{0\sigma} \\ D_{0\pi} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} D_{0\sigma}^* & D_{0\pi}^* \end{pmatrix}$ で定義される行列の時間平均を考える。

$$\begin{aligned} \left\langle \begin{pmatrix} D_{0\sigma} \\ D_{0\pi} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} D_{0\sigma}^* & D_{0\pi}^* \end{pmatrix} \right\rangle &= \begin{pmatrix} \langle D_{0\sigma}^* D_{0\sigma} \rangle & \langle D_{0\pi}^* D_{0\sigma} \rangle \\ \langle D_{0\sigma}^* D_{0\pi} \rangle & \langle D_{0\pi}^* D_{0\pi} \rangle \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} \langle D_{0\sigma}^2 \rangle & \langle D_{0\sigma} D_{0\pi} e^{-i\delta} \rangle \\ \langle D_{0\sigma} D_{0\pi} e^{i\delta} \rangle & \langle D_{0\pi}^2 \rangle \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (2.84)$$

この行列はエルミート行列であるから、単位行列とパウリ行列の和で表わすことができる。単位行列を $\{\boldsymbol{\sigma}_0\}$ 、パウリ行列を $\{\boldsymbol{\sigma}_x\}$ 、 $\{\boldsymbol{\sigma}_y\}$ 、 $\{\boldsymbol{\sigma}_z\}$ と表す。すなわち、

$$\{\boldsymbol{\sigma}_0\} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (2.85)$$

$$\{\boldsymbol{\sigma}_x\} = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.86)$$

$$\{\boldsymbol{\sigma}_y\} = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix} \quad (2.87)$$

$$\{\sigma_z\} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (2.88)$$

と表す。ここで

$$s_0 = \langle \mathcal{D}_{0\sigma}^2 + \mathcal{D}_{0\pi}^2 \rangle \quad (2.89)$$

$$s_1 = \langle \mathcal{D}_{0\sigma}^2 - \mathcal{D}_{0\pi}^2 \rangle \quad (2.90)$$

$$s_2 = 2\langle \mathcal{D}_{0\sigma}\mathcal{D}_{0\pi} \cos \delta \rangle \quad (2.91)$$

$$s_3 = 2\langle \mathcal{D}_{0\sigma}\mathcal{D}_{0\pi} \sin \delta \rangle \quad (2.92)$$

という量を導入すると、上の行列は、

$$\begin{pmatrix} \langle \mathcal{D}_{0\sigma}^2 \rangle & \langle \mathcal{D}_{0\sigma}\mathcal{D}_{0\pi}e^{-i\delta} \rangle \\ \langle \mathcal{D}_{0\sigma}\mathcal{D}_{0\pi}e^{i\delta} \rangle & \langle \mathcal{D}_{0\pi}^2 \rangle \end{pmatrix} = \frac{1}{2} [s_0\{\sigma_0\} + s_1\{\sigma_z\} + s_2\{\sigma_x\} + s_3\{\sigma_y\}] \quad (2.93)$$

と単位行列とパウリ行列の和で表される。

ここで s_i ($i = 0, 1, 2, 3$) の組をストークス・パラメータという。 s_0 は入射強度である。したがって、 $P_i \equiv s_i/s_0$ ($i = 1, 2, 3$) と定義すると、この量はストークス・パラメータを入射強度で規格化した無次元量になる。 $(P_1 P_2 P_3)$ をポアンカレ偏光ベクトルという。

ポアンカレベクトルと s_0 を用いると、上の行列は

$$\begin{pmatrix} \langle \mathcal{D}_{0\sigma}^2 \rangle & \langle \mathcal{D}_{0\sigma}\mathcal{D}_{0\pi}e^{-i\delta} \rangle \\ \langle \mathcal{D}_{0\sigma}\mathcal{D}_{0\pi}e^{i\delta} \rangle & \langle \mathcal{D}_{0\pi}^2 \rangle \end{pmatrix} = s_0 \frac{1}{2} [\{\sigma_0\} + P_1\{\sigma_z\} + P_2\{\sigma_x\} + P_3\{\sigma_y\}] \quad (2.94)$$

と記述される。なお、

$$\{\rho\} \equiv \frac{1}{2} [\{\sigma_0\} + P_1\{\sigma_z\} + P_2\{\sigma_x\} + P_3\{\sigma_y\}] \quad (2.95)$$

で定義される行列 $\{\rho\}$ を密度行列という。

ポアンカレベクトル $\mathbf{P} = (P_1 P_2 P_3)$ に対し、

$$|\mathbf{P}| \leq 1 \quad (2.96)$$

という関係が成立するが、 $|\mathbf{P}| = 1$ の場合を完全偏光、 $|\mathbf{P}| < 1$ の場合を部分偏光という。入射波が完全な平面波の場合、すなわち $\mathcal{D}_{0\sigma}$ 、 $\mathcal{D}_{0\pi}$ の振幅に時間ゆらぎのない場合は完全偏光となる。完全偏光は楕円偏光であるが、その特別なケースとして直線偏光及び円偏光を含む。

以下の議論では、入射波の偏光状態は完全偏光に近いものと仮定する。

完全偏光の例とポアンカレ球

円偏光のとき、

$$|\mathcal{D}_{0\sigma}| = |\mathcal{D}_{0\pi}|, \delta = \pm \frac{\pi}{2} \quad (2.97)$$

であることから、

$$\mathbf{P} = (0 \ 0 \ 1) \text{ or } (0 \ 0 \ -1) \quad (2.98)$$

となる。 $P_3 = 1$ は右回り円偏光、 $P_3 = -1$ は左回り円偏光である。左右円偏光の定義として

は、光を受ける方から見て電場ベクトルの先端が時計回りに回転するものを右回り、その逆を左回りとする。

垂直偏光と水平偏光はそれぞれ

$$\mathbf{P} = (1\ 0\ 0), (-1\ 0\ 0) \quad (2.99)$$

となり、45° 傾いた直線偏光は、

$$\mathbf{P} = (0\ 1\ 0) \text{ or } (0\ -1\ 0) \quad (2.100)$$

となる。

完全偏光の偏光状態は、ポアンカレ球と呼ばれる 3 次元空間の単位球上の点として表現される。例えば、前述した 6 種類の偏光は図 2.13 のように表される。

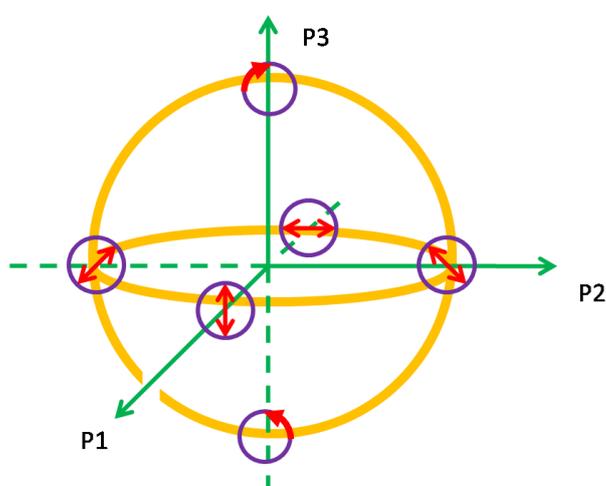


図 2.13 完全偏光の例とポアンカレ球

2.2.2 X線透過型移相子

可視光の領域では偏光を変換するために昔から広く移相子が用いられてきた。ところが X 線領域では、X 線が物質を透過してもほとんど複屈折を生じないため、近年に至るまで移相子は存在しなかった。そこでこの問題を解決するために考案されたのが、シリコンやゲルマニウム、ダイヤモンドのような完全に近い結晶における動力的回折効果を利用する方法である。この方式には回折 X 線を利用するタイプと透過 X 線を利用するタイプの二種類がある。歴史的には前者の方が先に開発されたが、偏光の変換効率が低く、取り扱いも難しかったため、普及には至らなかった。その後、これらの問題を一挙に解決するために、後者の透過 X 線を利用するタイプの移相子が開発された。今日、この X 線透過型移相子は世界各地の放射光施設に普及して広く利用されている。本研究においても、X 線透過型移相子を用いて垂直偏光の放射光を円偏光や水平偏光等に変換した。そこで本節では X 線透過型移相子の基本について簡単に紹介する。

移相子の基本原理

X線がシリコンやゲルマニウム、ダイヤモンドのような完全に近い結晶に入射して回折する場合を考える。このときX線は結晶内で多重散乱を受けるが、この動学的回折効果によって複屈折が生じる。この複屈折により、結晶を透過したX線の σ 偏光成分と π 偏光成分の間に位相差が生じる。この位相差は、入射角のブラッグ条件からのずれの角（オフセット角） $\Delta\theta$ の関数なので、 $\Delta\theta$ を調整することにより結晶を1/2波長板や1/4波長板等として機能させることができる。

移相子の性能

移相子の性能は、移相子によって生成される移相量 δ とX線の透過率 T によって記述される。移相量は動学的回折理論より

$$\Delta = -\frac{\pi}{2} \left[\frac{r_e^2 \text{Re}[F_H F_{-H}] \lambda^2 \sin 2\theta_B}{\pi^2 V_c^2 \Delta\theta} \right] t \quad (2.101)$$

という式で与えられる。ここで、 r_e は古典電子半径、 F_H は反射面 H の構造因子、 F_{-H} は $-H$ の構造因子、 t はX線の光路長、 V_c は単位胞の体積、 θ_B はブラッグ角、 $\Delta\theta$ はオフセット角である。 $\Delta\theta$ の符号は入射角がブラッグ角より大きいとき正である。図2.15の矢印の回転方向が正の方向である。

通常、X線透過型移相子はブラッグ角から離れた領域で利用されることが多い。このときX線の透過率は近似的に

$$T \sim e^{-\mu t} \quad (2.102)$$

という式で与えられる。ここで μ はX線の線吸収係数である。

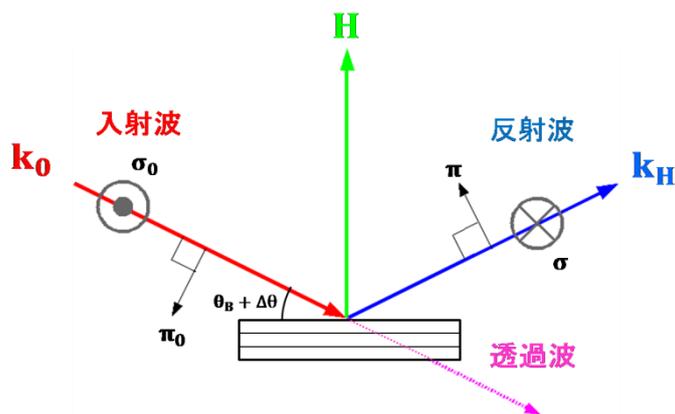


図 2.14: 入射波、反射波、透過波の関係

円偏光の生成

直線偏光のX線を透過型移相子で円偏光に変換することを考える。円偏光を生成するには第一に、移相子内で σ 偏光成分と π 偏光成分を等しい強さでコヒーレントに励起する必要がある。この条件を満たすには、移相子の散乱面を直線偏光に対して 45° 傾ければよい。

円偏光を生成する第二の条件は、移相量 δ が $\pm\frac{\pi}{2}$ となるようオフセット角 $\Delta\theta$ を調整することである。ちなみに $\delta = 2n\pi$ とすれば垂直偏光、 $\delta = (2n+1)\pi$ とすれば水平偏光を生成することができる。

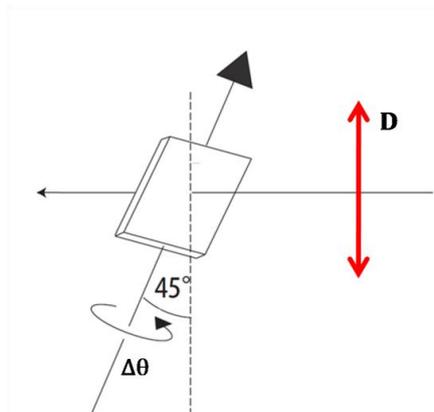


図 2.15: 移相子による直線偏光の円偏光への変換
移相子の散乱面は直線偏光に対して 45° 傾いている。

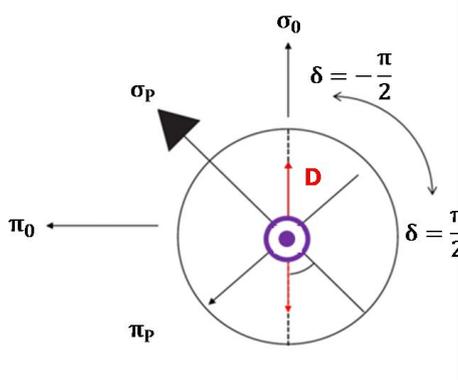


図 2.16: 入射波と移相子の散乱面に対する σ 偏光と π 偏光の方向ベクトルの関係

いま、図 2.16 に示すように単位ベクトル σ_p 、 π_p 、 σ_0 、 π_0 を定義する。ここで σ_p と π_p はそれぞれ σ 偏光成分と π 偏光成分の方向ベクトルであり、 σ_0 と π_0 はそれぞれ垂直方向ベクトル、水平方向ベクトルである。 σ_0 、 π_0 、 z の三つのベクトル、また、 σ_0 、 π_0 、 z の三つのベクトルは右手系をなす。なお、 σ_p は移相子の回転軸方向のベクトルになっている。

入射波が垂直偏光のとき、 σ_p と π_p を基底ベクトルとしてその電場成分を記述すると $(De^{i(\omega t - kz)}, De^{i(\omega t - kz + \pi)})$ となるので、移相子の透過波は $(De^{i(\omega t - kz)}, De^{i(\omega t - kz + \pi + \Delta)})$ となる。

例えば、

$$\Delta\theta = \frac{r_e^2 \text{Re}[F_H F_{-H}]}{\pi^2 V^2} \lambda^2 t \sin 2\theta_B \quad (2.103)$$

のとき、

$$\Delta = -\frac{\pi}{2} \quad (2.104)$$

となるので、透過波は、 $(De^{i(\omega t - kz)}, De^{i(\omega t - kz + \frac{\pi}{2})})$ となる。

一方、 σ_0 と π_0 を基底ベクトルとした場合、電束密度は $(De^{i(\omega t - kz)}, De^{i(\omega t - kz + \frac{\pi}{2})})$ となる。

先に述べた円偏光の定義によれば、 $(De^{i(\omega t - kz)}, De^{i(\omega t - kz + \delta)})$ で表される電束密度に対しては、 $\delta = \pi/2$ となるものが右回り円偏光、 $\delta = -\pi/2$ となるものが左回り円偏光である。

2.3 X線多波回折の偏光依存性

X線多波回折の強度は入射ビームの偏光状態に依存する [15]。この性質を利用することにより、X線多波回折の強度から入射ビームの偏光状態を完全に決定することができる。そこで本節では、まずX線多波回折の強度が入射ビームの偏光状態（ポアンカレ偏光ベクトル）を用いてどのように表されるかについて示す。次に、この式を用いて実験データから偏光状態を決定する方法について述べる。

2.3.1 偏光状態の混合

通常、結晶によって回折X線が一つしか生じない場合、入射X線が σ 偏光なら回折X線も σ 偏光になり、入射X線が π 偏光なら回折X線も π 偏光になる。一般的に σ 偏光成分と π 偏光成分は独立しており、回折の前後で両者が混合することは特殊な例外を除いてほとんどない。ところが、回折X線が二つ以上生じる多波回折の場合、特に入射X線と回折X線が同一平面内に乗らない場合に偏光の混合が生じる。多波回折を利用した偏光決定では、実はこの偏光の混合が本質的な役割を果たす。そこでここでは、多波回折によって生じる偏光の混合について議論する。なお、励起される遠回り反射は1種類であるものとする。

図 2.17 に示すように、逆格子点 H を励起しつつ Renninger Scan を行う場合を考える。入射波を $D_0 e^{-ik_0 \cdot r}$ 、そのポアンカレ偏光ベクトルを $\mathbf{P} = (P_1 P_2 P_3)$ とする。また、入射波と反射波の波数ベクトルをそれぞれ \mathbf{k}_0 、 \mathbf{k}_H と表す。そして、励起される遠回り反射の原因となる、逆格子点を L とする。

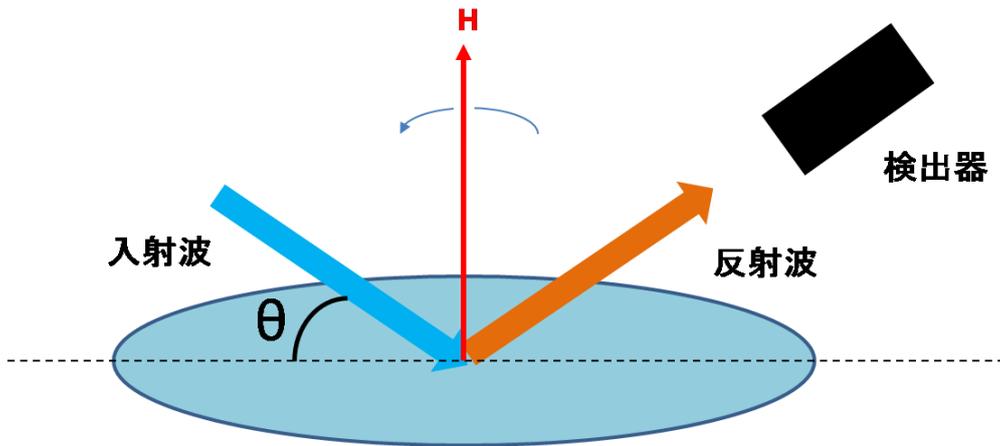


図 2.17: Renninger scan

多波回折条件の近傍で偏光の混合が生じる。

2.1 節で得た結論の式 2.80 は電場に関するベクトル方程式である。ここでは、この式を σ 偏光成分と π 偏光成分に分解して考えることにする。このとき、入射波と反射波はそれぞれ、

$$\mathbf{D}_0 = D_{0\sigma}\boldsymbol{\sigma}_0 + D_{0\pi}\boldsymbol{\pi}_0 = \begin{pmatrix} D_{0\sigma} \\ D_{0\pi} \end{pmatrix} \quad (2.105)$$

$$\mathbf{D}_H = D_{H\sigma}\boldsymbol{\sigma} + D_{H\pi}\boldsymbol{\pi} = \begin{pmatrix} D_{H\sigma} \\ D_{H\pi} \end{pmatrix} \quad (2.106)$$

と表される。ここで単位ベクトル $\boldsymbol{\sigma}$ 、 $\boldsymbol{\sigma}_0$ 、 $\boldsymbol{\pi}$ 、 $\boldsymbol{\pi}_0$ は図 2.18 のように定義される。

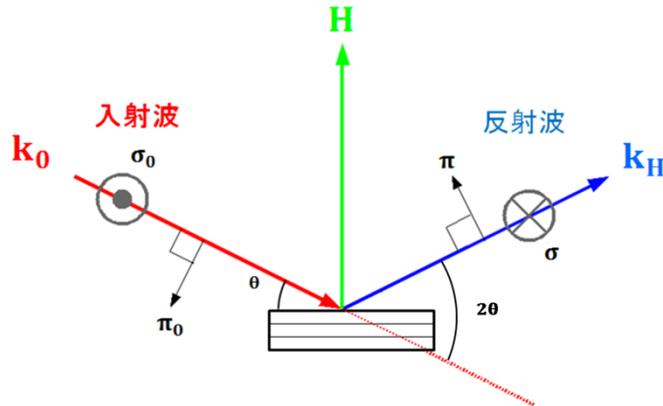


図 2.18: $\boldsymbol{\sigma}$ 、 $\boldsymbol{\sigma}_0$ 、 $\boldsymbol{\pi}$ 、 $\boldsymbol{\pi}_0$ の定義

このように σ 偏光成分と π 偏光成分に分解すると、2.1 節の式 2.80 は

$$\begin{pmatrix} D_{H\sigma} \\ D_{H\pi} \end{pmatrix} = N r_e F_H \frac{e_0^{-ik_0 r}}{r} \{\mathcal{M}_{HL}\} \begin{pmatrix} D_{0\sigma} \\ D_{0\pi} \end{pmatrix} \quad (2.107)$$

という形で表される。ここで、 $\{\mathcal{M}_{HL}\}$ は、偏光混合行列と呼ばれる 2×2 の行列である。 $\{\mathcal{M}_{HL}\}$ は主反射による項と遠回り反射による項の二つの部分に分けられる。

$$\{\mathcal{M}_{\text{HL}}\} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \cos 2\theta \end{pmatrix} + B(\phi)e^{i\delta_{\text{HL}}}\{\mathcal{A}\} \quad (2.108)$$

ここで、第1項は主反射、第2項は遠回り反射の効果を表す。主反射では偏光の混合は生じないが、遠回り反射では偏光の混合が生じる。幾何行列 $\{\mathcal{A}\}$ と方向パラメータ $B(\phi)$ は

$$\begin{aligned} \{\mathcal{A}\} &= \begin{pmatrix} A_{\sigma\sigma} & A_{\pi\sigma} \\ A_{\sigma\pi} & A_{\pi\pi} \end{pmatrix} \\ &= \frac{\Gamma}{k_0^2} \left| \frac{F_L F_{H-L}}{F_H} \right| \begin{pmatrix} k_L^2 - (\mathbf{L} \cdot \boldsymbol{\sigma}_0)^2 & -(\mathbf{k}_L \cdot \boldsymbol{\pi}_0)(\mathbf{L} \cdot \boldsymbol{\sigma}_0) \\ (\mathbf{k}_L \cdot \boldsymbol{\pi})(\mathbf{L} \cdot \boldsymbol{\sigma}_0) & -k_L^2(\boldsymbol{\pi} \cdot \boldsymbol{\pi}_0) + (\mathbf{k}_L \cdot \boldsymbol{\pi}_0)(\mathbf{k}_L \cdot \boldsymbol{\pi}) \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (2.109)$$

$$B(\phi) = \frac{k_0^2}{k_0^2 - k_L^2} = \frac{k_0}{2 \cos \theta \Delta\phi \boldsymbol{\sigma}_0 \cdot \mathbf{L}} \quad (2.110)$$

と求まる（導出は付録B参照）。ここで、 θ はブラッグ角、 F_H は構造因子であり、 δ_{HL} は

$$\delta_{\text{HL}} = \text{Aug} \left[\frac{F_L F_{H-L}}{F_H} \right] \quad (2.111)$$

で定義される構造因子の位相に関する量である。

\mathbf{k}_L と \mathbf{k}_0 の間にはラウエ条件の一部

$$\mathbf{k}_L = \mathbf{k}_0 + \mathbf{L} \quad (2.112)$$

が成り立つ。ただし、ラウエ条件と異なり $|\mathbf{k}_L| \neq |\mathbf{k}_0|$ である。

$\Delta\phi$ は多波回折が生じる方位角からのずれの角であり、

$$\Delta\phi \equiv \phi - \phi_L \quad (2.113)$$

と定義される。方位角は、H側から見て時計回りが正である。

$\boldsymbol{\sigma}_0$ 、 $\boldsymbol{\pi}_0$ および \mathbf{k}_L が方位角 ϕ に依存するので、幾何行列 $\{\mathcal{A}\}$ は ϕ に依存する。しかし、 $\phi = \phi_L$ の付近では $\{\mathcal{A}\}$ はほとんど一定なので、 $\phi = \phi_L$ のときの値で代用することができる。本研究では $\phi = \phi_L$ 付近に着目して偏光決定を行うので、この近似が成り立つ。

2.3.2 偏光決定の式

多波回折を利用して偏光決定を行う実験では、X線の反射強度を検出器で測定する（図2.19）。そこで、前節で得た電場に関する式からX線強度の式を導くことにする。

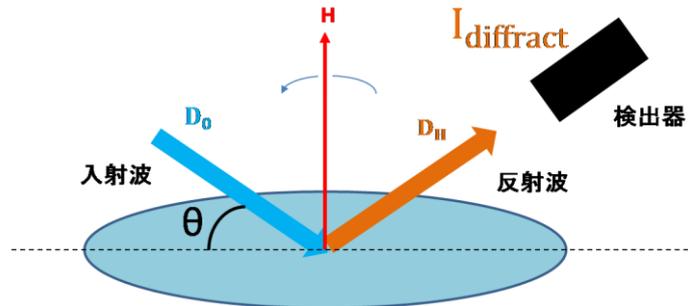


図 2.19: X線検出器による反射強度の測定

X線の強度は電場の絶対値の自乗の時間平均に比例する。したがって、反射強度は

$$I_{\text{diffract}} \propto \langle \mathbf{D}_H^* \cdot \mathbf{D}_H \rangle \quad (2.114)$$

と表される。電場ベクトルを σ 偏光成分と π 偏光成分に分解して、この式を展開すると、

$$\begin{aligned} I_{\text{diffract}} &\propto \left\langle \left(\begin{array}{cc} D_{H\sigma}^* & D_{H\pi}^* \end{array} \right) \left(\begin{array}{c} D_{H\sigma} \\ D_{H\pi} \end{array} \right) \right\rangle \\ &\propto \left\langle \left(\begin{array}{cc} D_{0\sigma}^* & D_{0\pi}^* \end{array} \right) \{ \mathcal{M}_{HL}^\dagger \mathcal{M}_{HL} \} \left(\begin{array}{c} D_{0\sigma} \\ D_{0\pi} \end{array} \right) \right\rangle \\ &= \left\langle \text{tr} \left[\left(\begin{array}{c} D_{0\sigma} \\ D_{0\pi} \end{array} \right) \left(\begin{array}{cc} D_{0\sigma}^* & D_{0\pi}^* \end{array} \right) \{ \mathcal{M}_{HL}^\dagger \mathcal{M}_{HL} \} \right] \right\rangle \\ &= \text{tr} \left[\left\langle \left(\begin{array}{c} D_{0\sigma} \\ D_{0\pi} \end{array} \right) \left(\begin{array}{cc} D_{0\sigma}^* & D_{0\pi}^* \end{array} \right) \{ \mathcal{M}_{HL}^\dagger \mathcal{M}_{HL} \} \right\rangle \right] \\ &= \text{tr} \{ \rho \mathcal{M}_{HL}^\dagger \mathcal{M}_{HL} \} \\ &= \text{tr} \{ \mathcal{M}_{HL} \rho \mathcal{M}_{HL}^\dagger \} \end{aligned} \quad (2.115)$$

$$I_{\text{diffract}} \propto \text{tr} \{ \mathcal{M}_{HL} \rho \mathcal{M}_{HL}^\dagger \} \quad (2.116)$$

という式が求まる。ここで ρ は入射光の密度行列であり、

$$\rho = \left(\begin{array}{c} D_{0\sigma} \\ D_{0\pi} \end{array} \right) \left(\begin{array}{cc} D_{0\sigma}^* & D_{0\pi}^* \end{array} \right) = \frac{1}{2} \left(\begin{array}{cc} 1 + P_1 & P_2 - iP_3 \\ P_2 + iP_3 & 1 - P_1 \end{array} \right) \quad (2.117)$$

という関係式が成り立つ。上式の展開にあたってはトレースに関する関係式

$$(x_2 \ y_2) \{ A \} \begin{pmatrix} x_1 \\ y_1 \end{pmatrix} = \text{tr} \left[\begin{pmatrix} x_1 \\ y_1 \end{pmatrix} (x_2 \ y_2) \{ A \} \right] \quad (2.118)$$

を用いた。

反射強度の σ 成分 $I_{\text{diffract}}^\sigma$ と π 成分 I_{diffract}^π はそれぞれ、

$$\begin{aligned} I_{\text{diffract}}^\sigma &\propto \langle D_{H\sigma}^* \cdot D_{H\sigma} \rangle \\ &= \text{tr} \left\{ \mathcal{M}_{HL} \rho \mathcal{M}_{HL}^\dagger \left(\begin{array}{cc} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{array} \right) \right\} \end{aligned} \quad (2.119)$$

$$\begin{aligned} I_{\text{diffract}}^\pi &\propto \langle D_{H\pi}^* \cdot D_{H\pi} \rangle \\ &= \text{tr} \left\{ \mathcal{M}_{HL} \rho \mathcal{M}_{HL}^\dagger \left(\begin{array}{cc} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{array} \right) \right\} \end{aligned} \quad (2.120)$$

となる。

前節で示したように、偏光混合行列 $\{ \mathcal{M}_{HL} \}$ は主反射の項と遠回り反射の項の二つから成る。

$$\{ \mathcal{M}_{HL} \} = \left(\begin{array}{cc} 1 & 0 \\ 0 & \cos 2\theta \end{array} \right) + B(\phi) e^{i\delta_{HL}} \{ \mathcal{A} \} = \{ \mathcal{M}_{HL}^{(1)} \} + \{ \mathcal{M}_{HL}^{(2)} \} \quad (2.121)$$

これを代入すると、反射強度は

$$\begin{aligned}
I_{\text{diffract}} &= \text{tr} \left\{ \left(\mathcal{M}_{\text{HL}}^{(1)} + \mathcal{M}_{\text{HL}}^{(2)} \right) \rho \left(\mathcal{M}_{\text{HL}}^{(1)} + \mathcal{M}_{\text{HL}}^{(2)} \right)^\dagger \right\} \\
&= \text{tr} \left\{ \mathcal{M}_{\text{HL}}^{(1)} \rho \mathcal{M}_{\text{HL}}^{(1)\dagger} \right\} + \left[\text{tr} \left\{ \mathcal{M}_{\text{HL}}^{(1)} \rho \mathcal{M}_{\text{HL}}^{(2)\dagger} \right\} + \text{c. c.} \right] + \text{tr} \left\{ \mathcal{M}_{\text{HL}}^{(2)} \rho \mathcal{M}_{\text{HL}}^{(2)\dagger} \right\} \\
&\equiv I_{\text{main}} + I_{\text{int}} + I_{\text{det}} \tag{2.122}
\end{aligned}$$

となる。ここで、第1項 I_{main} は主反射の強度を表し、方位角 ϕ 依存性がない。第2項 I_{int} は主反射と遠回り反射の干渉光強度を表し、 $\Delta\phi$ に関する奇関数となる。第3項 I_{det} は遠回り反射の強度を表し、 $\Delta\phi$ に関する偶関数である。

同様に、反射強度の σ 、 π 偏光成分について計算すると、主反射強度 I_{main}^σ 、 I_{main}^π と干渉光強度 I_{int}^σ 、 I_{int}^π は次のようになる。

$$I_{\text{main}}^\sigma \equiv \text{tr} \left\{ \mathcal{M}_{\text{HL}}^{(1)} \rho \mathcal{M}_{\text{HL}}^{(1)\dagger} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \right\} = \frac{1 + P_1}{2} \tag{2.123}$$

$$\begin{aligned}
I_{\text{int}}^\sigma &\equiv \left[\text{tr} \left\{ \mathcal{M}_{\text{HL}}^{(1)} \rho \mathcal{M}_{\text{HL}}^{(2)\dagger} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \right\} + \text{c. c.} \right] \\
&= B [A_{\sigma\sigma} \cos \delta_{\text{HL}} (1 + P_1) + A_{\pi\sigma} \cos \delta_{\text{HL}} P_2 - A_{\pi\sigma} \sin \delta_{\text{HL}} P_3] \tag{2.124}
\end{aligned}$$

$$I_{\text{main}}^\pi \equiv \text{tr} \left\{ \mathcal{M}_{\text{HL}}^{(1)} \rho \mathcal{M}_{\text{HL}}^{(1)\dagger} \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \right\} = \frac{1 - P_1}{2} \cos^2 2\theta \tag{2.125}$$

$$\begin{aligned}
I_{\text{int}}^\pi &\equiv \left[\text{tr} \left\{ \mathcal{M}_{\text{HL}}^{(1)} \rho \mathcal{M}_{\text{HL}}^{(2)\dagger} \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \right\} + \text{c. c.} \right] \\
&= B \cos 2\theta [A_{\pi\pi} \cos \delta_{\text{HL}} (1 - P_1) + A_{\sigma\pi} \cos \delta_{\text{HL}} P_2 + A_{\sigma\pi} \sin \delta_{\text{HL}} P_3] \tag{2.126}
\end{aligned}$$

X線の反射強度は σ 偏光成分の強度と π 偏光成分の強度の和である。したがって、その主反射強度と干渉光強度は、

$$I_{\text{main}} = I_{\text{main}}^\sigma + I_{\text{main}}^\pi = \frac{1 + P_1}{2} + \frac{1 - P_1}{2} \cos^2 2\theta \tag{2.127}$$

$$\begin{aligned}
I_{\text{int}} &= I_{\text{int}}^\sigma + I_{\text{int}}^\pi \\
&= B [A_{\sigma\sigma} \cos \delta_{\text{HL}} (1 + P_1) + A_{\pi\sigma} \cos \delta_{\text{HL}} P_2 - A_{\pi\sigma} \sin \delta_{\text{HL}} P_3] \\
&\quad + B \cos 2\theta [A_{\pi\pi} \cos \delta_{\text{HL}} (1 - P_1) + A_{\sigma\pi} \cos \delta_{\text{HL}} P_2 + A_{\sigma\pi} \sin \delta_{\text{HL}} P_3] \tag{2.128}
\end{aligned}$$

となる。

ここで、 $\Delta I(\Delta\phi)$ を

$$\Delta I(\Delta\phi) \equiv I(\phi_L + \Delta\phi) - I(\phi_L - \Delta\phi) \tag{2.129}$$

と定義し、 $\Delta I^\sigma(\Delta\phi)$ 、 $\Delta I^\pi(\Delta\phi)$ についても同様に定義する。このとき、 I_{main} と I_{det} が $\Delta\phi$ について偶関数であることから、

$$\Delta I(\Delta\phi) = I_{\text{int}}(\phi_L + \Delta\phi) - I_{\text{int}}(\phi_L - \Delta\phi) \tag{2.130}$$

となる。 $\Delta I^\sigma(\Delta\phi)$ 、 $\Delta I^\pi(\Delta\phi)$ についても同様である。以上より、以下の式が導かれる。

$$\begin{aligned}
\frac{\Delta I^\sigma(\Delta\phi)}{I_{\text{main}}^\sigma} &= \frac{(I_{\text{int}}^\sigma(\phi_L + \Delta\phi) - I_{\text{int}}^\sigma(\phi_L - \Delta\phi))}{I_{\text{main}}^\sigma} & (2.131) \\
&= \frac{B(\phi_L + \Delta\phi) - B(\phi_L - \Delta\phi)}{\frac{1+P_1}{2}} [A_{\sigma\sigma} \cos \delta_{\text{HL}} (1+P_1) + A_{\pi\sigma} \cos \delta_{\text{HL}} P_2 - A_{\pi\sigma} \sin \delta_{\text{HL}} P_3] \\
&= \frac{1}{\Delta\phi} \cdot \frac{a}{\cos \theta \lambda \sigma_0 \cdot \mathbf{L}} [A_{\sigma\sigma} \cos \delta_{\text{HL}} (1+P_1) + A_{\pi\sigma} \cos \delta_{\text{HL}} P_2 - A_{\pi\sigma} \sin \delta_{\text{HL}} P_3] \frac{2}{1+P_1}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\frac{\Delta I^\pi(\Delta\phi)}{I_{\text{main}}^\pi} &= \frac{(I_{\text{int}}^\pi(\phi_L + \Delta\phi) - I_{\text{int}}^\pi(\phi_L - \Delta\phi))}{I_{\text{main}}^\pi} \\
&= \frac{B(\phi_L + \Delta\phi) - B(\phi_L - \Delta\phi)}{\frac{1-P_1}{2} \cos^2 2\theta} \cos 2\theta [A_{\pi\pi} \cos \delta_{\text{HL}} (1-P_1) + A_{\sigma\pi} \cos \delta_{\text{HL}} P_2 \\
&\quad + A_{\sigma\pi} \sin \delta_{\text{HL}} P_3] \\
&= \frac{1}{\Delta\phi} \cdot \frac{a}{\cos \theta \lambda \sigma_0 \cdot \mathbf{L}} [A_{\pi\pi} \cos \delta_{\text{HL}} (1-P_1) + A_{\sigma\pi} \cos \delta_{\text{HL}} P_2 + A_{\sigma\pi} \sin \delta_{\text{HL}} P_3] \frac{2}{1-P_1} \\
&\quad \cdot \frac{1}{\cos 2\theta} & (2.132)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\frac{\Delta I(\Delta\phi)}{I_{\text{main}}} &= \frac{(I_{\text{int}}(\phi_L + \Delta\phi) - I_{\text{int}}(\phi_L - \Delta\phi))}{I_{\text{main}}} \\
&= \frac{1}{\Delta\phi} \frac{a}{\cos \theta \lambda \sigma_0 \cdot \mathbf{L}} & (2.133) \\
&\quad \cdot \frac{\{[A_{\sigma\sigma} \cos \delta_{\text{HL}} (1+P_1) + A_{\pi\sigma} \cos \delta_{\text{HL}} P_2 - A_{\pi\sigma} \sin \delta_{\text{HL}} P_3] + \cos 2\theta [A_{\pi\pi} \cos \delta_{\text{HL}} (1-P_1) + A_{\sigma\pi} \cos \delta_{\text{HL}} P_2 + A_{\sigma\pi} \sin \delta_{\text{HL}} P_3]\}}{\frac{1+P_1}{2} + \frac{1-P_1}{2} \cos^2 2\theta}
\end{aligned}$$

式 2.131 は σ 偏光成分の強度、式 2.132 は π 偏光成分の強度、式 2.133 は全強度についての式である。これらの式からわかるように、 $\Delta I(\Delta\phi)/I_{\text{main}}$ は入射 X 線の偏光状態 ($P_1 P_2 P_3$) に依存する。逆に言うと、三つの異なる遠回り反射について $\Delta I(\Delta\phi)/I_{\text{main}}$ を測定すれば、未知数 P_1 、 P_2 、 P_3 を決定することができる。

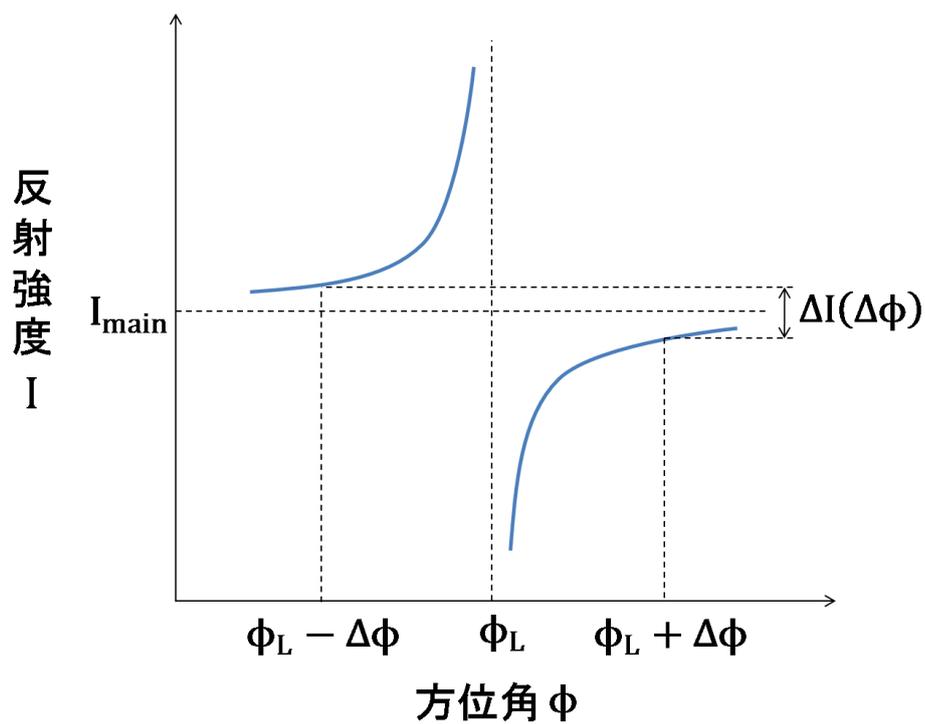


図 2.20: 多波回折条件付近における反射強度の変化
 青線は反射強度曲線であり、双曲線状になる。この図では ΔI は負である。

第 3 章 実験と結果

実験は高エネルギー加速器研究機構の放射光科学研究施設 (Photon Factory、略称 PF) のビームライン BL-14B で行った。実験期間は 2009 年 11 月 20 日から 11 月 26 日の 6 日間であった。

3.1 実験

3.1.1 実験装置

ビームラインについて

BL-14B は垂直ウィグラーを光源とする精密 X 線光学実験ステーションである [24][25]。通常、放射光は水平面内に偏った直線偏光であるが、垂直ウィグラーからの光は垂直面内に偏った直線偏光である。そのおかげで BL-14B では光学系を水平面内に組むことができ、複雑な構成の精密 X 線光学系でも比較的容易に組み立てることができる。ビームラインには Si (111) の二結晶分光器が設置されており、これにより白色の放射光を単色化する。利用可能な X 線の波長領域は一次光で 0.6\AA から 1.3\AA である。実験に使用した X 線のエネルギーは 10keV (波長は 1.24\AA) である。後述するように多波回折のピーク位置から、より正確なエネルギーを測定することができ、 1.239\AA であることが確認された。(3.2 実験結果参照) 入射ビームのエネルギーは実験を通して一定である。実験時の蓄積リングの電流値はおよそ 448mA であった。

実験ハッチ内の装置等について

実験ハッチ内には二結晶分光器で単色化された X 線が入射する。まず Si (220) 結晶を用いてビームの進路を BL-15 側に屈曲させた。この Si (220) 結晶はビームの単色性と平行性を良くする働きも行う。次に 4 象限スリットを設置して、ビームのサイズを 0.5mm 角程度に整形した。これにより、特に垂直面内の発散角が数秒程度になる。

この後、垂直偏光を右回り・左回りの円偏光や水平偏光等に変換するために、透過型の X 線移相子を設置した。移相子には厚さ 2.0mm の (001) ダイヤモンド結晶を使用し、それをラウエ・ケースの 111 反射近傍の角度に設定した (図 3.1 参照)。なお、散乱面 (入射 X 線と回折 X 線を含む平面) は、 σ 偏光成分と π 偏光成分を等しい強度でコヒーレントに励起するために、水平面から約 45° 傾けた。

最後に、偏光解析を行うために検光子を設置した。検光子には GaAs (222) 結晶もしくは Si (620) 結晶を用いた。

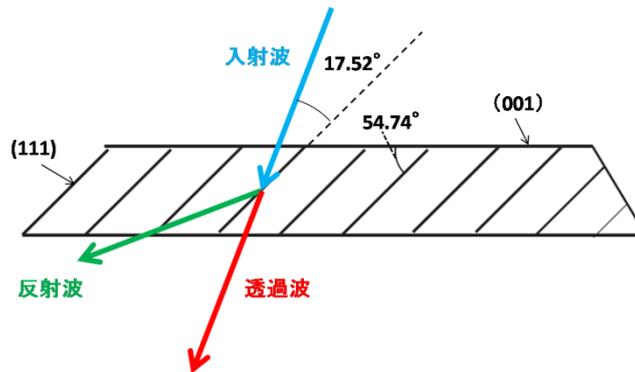


図 3.1: 移相子への入射波と移相子からの反射波、透過波の関係
これは移相子の回転軸方向から見た図である。

実験に使用した光学結晶に関するデータは以下のとおりである。

表 3.1: 各結晶格子定数

結晶	格子定数[Å]
Si	5.431
ダイヤモンド	3.567
GaAs	5.653

表 3.2: GaAs 結晶の仕様

品名	GaAs(1 1 1)ウェハ
直径	76.0 ± 0.3mm
厚さ	600 ± 20μm
面方位	(1 1 1)
オリフラ位置	(0 1 - 1)

表 3.3: ダイヤモンド結晶の仕様

品名	住友電工ハードメタル製 IIa 型高純度人工ダイヤモンド結晶
面方位	(001)
サイズ	5.0mm(W) × 5.0mm(D) × 2.0mm(t)

X 線強度測定のための検出器

X 線の強度を測定するために 4 つの X 線検出器を使用した。
まず、第一結晶への入射ビーム強度をモニターするために、光軸上にカプトン膜を置き、そこからの散乱 X 線強度をシンチレーションカウンタで測定した。

次に、移相子を透過したビーム強度を測定するためにイオンチェンバーを設置した。これは検光子への入射強度に相当する。後のデータ解析で、入射ビーム強度の揺らぎを補正するために、このデータを使用した。

また、ダイヤモンドの(111)面からの反射強度を測定するフォトダイオード [26] を設置した。これにより移相子のブラッグ角を探し出し、その位置(原点)から移相子の角度を $\Delta\theta$ (オフセット角)ずらすことにより、偏光の変換を行う。

最後に検光子からの反射強度を測定するためのフォトダイオードを設置した。

3.1.2 実験方法

本実験の最大の目的は、多波回折を利用して偏光解析を行うことである。この目的を遂げるために、まず2種類の予備実験を行った。第一はSi(620)検光子結晶を用いた偏光解析実験、第二は多波回折の検出実験である。

3.1.2.1 Si(620) 検光子結晶を用いた偏光解析実験

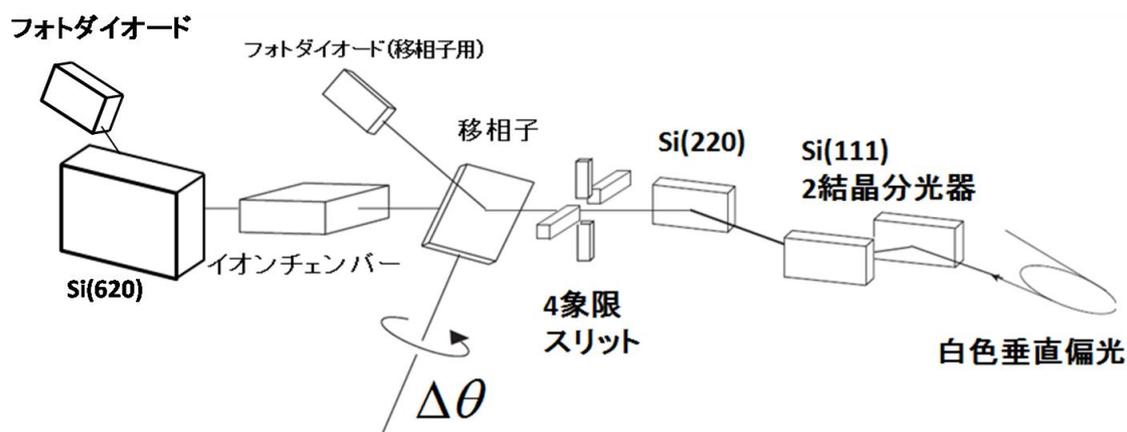


図 3.2: Si(620)検光子結晶を用いた偏光解析実験の配置図

これまでX線領域では、 45° に近いブラッグ反射を利用することにより偏光解析が行われてきた。今回、実験に使用したX線の波長は 1.24\AA である。そこで、この波長に対してブラッグ角が 45° に近くなるような反射面を探したところ、シリコンの(620)面が見つかった。Si(620)結晶のブラッグ角は 46.22° と 45° に近いので、ほぼ理想的な直線検光子として機能する。このSi(620)結晶を散乱面が水平面内となるよう設置した。この配置では、水平偏光に相当する π 偏光の反射率はほぼゼロであり、垂直偏光に相当する σ 偏光のみが反射されることになる。

移相子の角度をブラッグ角からずらすと、そのずれの角(オフセット角 $\Delta\theta$)に応じて透過X線の偏光が変化する。この偏光の変化は、検光子結晶で検出される垂直偏光成分(σ 偏光成分)の強度変動として観測される。例えば、移相子で水平偏光が生成された場合、検

光子の反射強度はほぼゼロと最低になる。反対に移相子で垂直偏光が生成された場合、検光子の反射強度は最大になる。円偏光の場合、反射強度は垂直偏光のときの半分程度である。このように移相子のオフセット角 $\Delta\theta$ を変えながら検光子結晶の反射強度を測定することで、どの $\Delta\theta$ でどの偏光が生成されるか推定することができる。

実験手順

最初に移相子の角度をラウエケース 111 反射条件を満たす位置に合わせた。これは移相子を回転させながら反射強度をフォトダイオードで検出することにより行った。反射強度が最大になる点を移相子回転の原点とした ($\Delta\theta = 0^\circ$)。

次に Si (620) 検光子結晶の角度調整を行った。検光子を回転させながら反射強度をフォトダイオードで測定し、反射強度が最大になるよう検光子の角度を調整した。

最後に移相子のオフセット角 $\Delta\theta$ を変えながら検光子からの反射強度を測定した。オフセット角 $\Delta\theta$ は -0.05° から $+0.05^\circ$ の範囲を 0.0005° 刻みでスキャンした。一点当たりの測定時間は 0.5 秒であった。

3.1.2.2 多波回折の検出実験

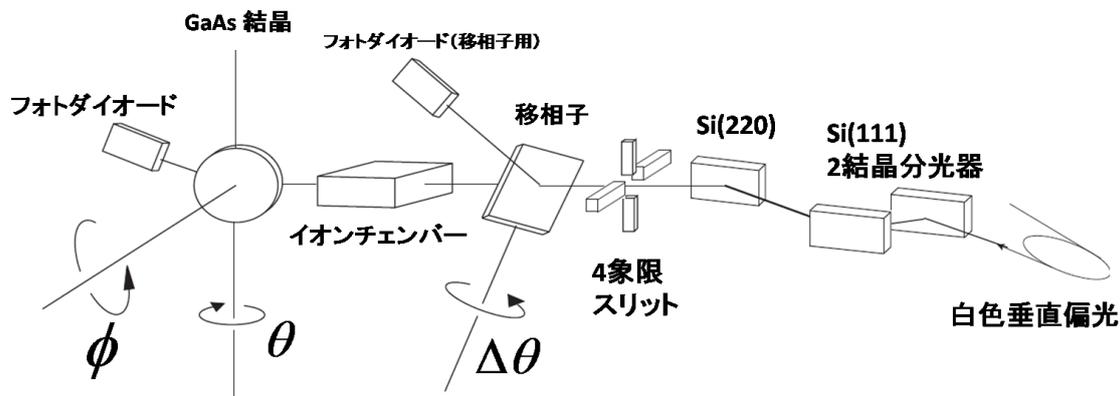


図 3.3: 多波回折検出実験及び多波回折を用いた偏光解析実験の配置図

次に検光子結晶を Si (620) から GaAs (222) に交換し、多波回折を検出する実験を行った。これを行った大きな理由の一つは、GaAs (222) 結晶の方位角 ϕ を精密に決定することである。方位角 ϕ の精密決定は、あらかじめ算出しておいたグリッチマップと実験で実際に生じた多波回折の角度とを照合することにより行った。なお後述するように、多波回折の角度位置から、実験に使用した X 線の波長を精密に求めることもできる。

実験手順

Renninger Scan を行うには、結晶の方位角 ϕ が変化しても主反射面は常にブラッグ条件を満たさなければならない。言い換えると、主反射面の逆格子ベクトルは回転軸と平行で

なければならない。そこでこの条件を満たすよう、GaAs (222) 結晶のあおり角調整を行った。あおり角調整には Huber 社のゴニオメーターヘッド 1003a を使用した。このゴニオメーターヘッドには直交する二つのあおり角調整機構が備わっており、DC モーター駆動により数秒程度の精度であおり角を調整することができる。ここで直交する二つのあおり角を Tilt-X、Tilt-Y と呼ぶことにする。あおり角調整の手順は以下の通りである。①Tilt-X が入射ビームとほぼ平行になるよう方位角 ϕ を合わせてから、 θ を調整してブラッグ反射を生じさせる。この時の θ を θ_0 とする。②方位角 ϕ を 180° 回転させた後、 θ を調整してブラッグ反射を生じさせる。このときの θ を θ_π とする。③ θ_0 と θ_π から Tilt-X のずれの大きさを $(\theta_0 - \theta_\pi)/2$ と算出することができる。この値を用いて、Tilt-X を補正する。④Tilt-X を補正するとその分入射角がずれるので、 θ を調整してブラッグ反射を生じさせる。⑤方位角 ϕ を 90° 回転させた後、Tilt-Y 調整して、ブラッグ反射を生じさせる。この①から⑤の手順を数回繰り返すことにより、主反射面の逆格子ベクトルを回転軸に対してほぼ平行にすることができる。

その後、多波回折の生じる方位角を見出すために Renninger Scan を行う。すなわち、方位角 ϕ の変化に対する反射強度の変化を測定する。本実験においては、あおり角調整に使用したゴニオメーターヘッドの精度は数秒程度だったので、あおり調整の誤差もこの程度の大きさである。したがって、方位角 ϕ を 360° 回転させると、ブラッグ条件からのずれが生じて反射強度が低下するという問題が生じる。

しかしながら、偏光測定のために行った方位角回転は多波回折が生じる位置から 0.1° 程度の範囲であり、この範囲内で常にブラッグ条件満足させることは十分可能であった。Renninger Scan は $\phi = 0^\circ$ 付近から $\phi = 60^\circ$ 付近の領域で行った (ϕ の原点及び回転方向については図 3.4 参照)。

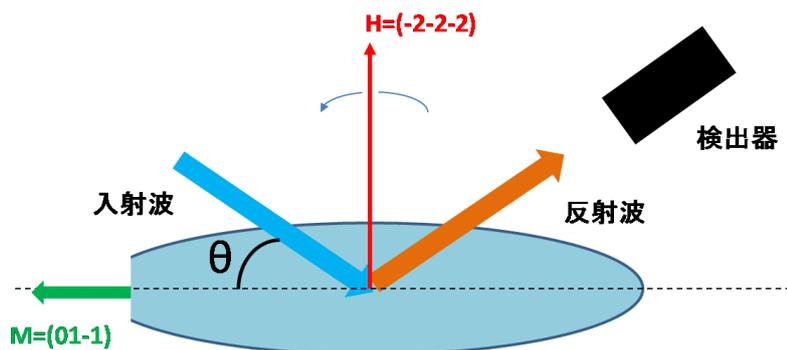


図 3.4: 結晶の配置

方位角 ϕ の定義は、入射波が上のように入射している時を 0° とした。また ϕ の符号は時計回りの回転方向を正とした。結晶の端が欠けている部分はオリフラを表す。今回使用した結晶のオリフラは、 $M = (0\ 1\ -1)$ である。M の回転角が ϕ に他ならない。

3.1.2.3 多波回折を用いた偏光解析実験

GaAs (222) 検光子結晶の方位角 ϕ が精密に求まった後、次にいよいよ多波回折による偏光解析実験を行った。実験配置は前節で示した配置と同じである。

偏光に関しては、 σ 偏光、 π 偏光、右回り円偏光、左回り円偏光を用いた。移相子のオフセット角は各々 $\Delta\theta = 0.25^\circ, 0.0075^\circ, 0.014^\circ, -0.03^\circ$ である。

方位角に関しては、 $\phi = -8.67^\circ, -28.13^\circ, -31.87^\circ, -40.95^\circ, -46.89^\circ, -88.13^\circ$ の 6 点である。それぞれの遠回り反射の面指数は

$$(\bar{5} 1 \bar{1}), (\bar{5} \bar{1} \bar{1}), (\bar{1} \bar{1} \bar{5}), (1 1 \bar{3}), (\bar{5} \bar{1} 1), (\bar{1} \bar{1} 3)$$

となっている。

実験内容

測定は 1 次元スキャンと 2 次元スキャンの二種類を行った。

まず 1 次元スキャンでは、入射角 θ を固定し、同時回折条件が満たされる ϕ_L 付近で Renninger Scan を行った。 ϕ の刻み幅は 0.002° である。スキャン範囲は $-0.8^\circ < \phi < +0.8^\circ$ であり、この範囲内ではあおり角調整誤差による反射強度の変動は無視することができる。

次に 2 次元スキャンでは、同時回折条件の近傍で ϕ と θ の両方をスキャンしながら反射強度を測定した。実際には ϕ_L 付近で ϕ を変化させ、各々の ϕ に対して θ に関する回折強度曲線（ロッキングカーブ）を測定した。 θ と ϕ の刻み幅は各々 $0.5''$ 、 0.002° である。

一般的に言って、1 次元スキャンでは短時間でデータを取得することができるが、分散の影響が考慮されていないため得られる結果は近似にすぎない。それに対して 2 次元スキャンでは測定に長い時間がかかるが、分散の影響を考慮した結果が得られる。

それぞれの測定で、(偏光の種類) \times (方位角の数) = 24 のデータを得た。

3.2. 実験結果

この節では、Si (620) 検光子結晶を用いた偏光解析実験、多波回折の検出実験、多波回折を用いた偏光解析実験で得られた結果について述べる。

3.2.1 Si (620) 検光子結晶を用いた偏光解析実験

X 線透過型移相子のオフセット角 $\Delta\theta$ に対する反射強度の変化を測定した結果、図 3.5 のようなプロファイルが得られた。

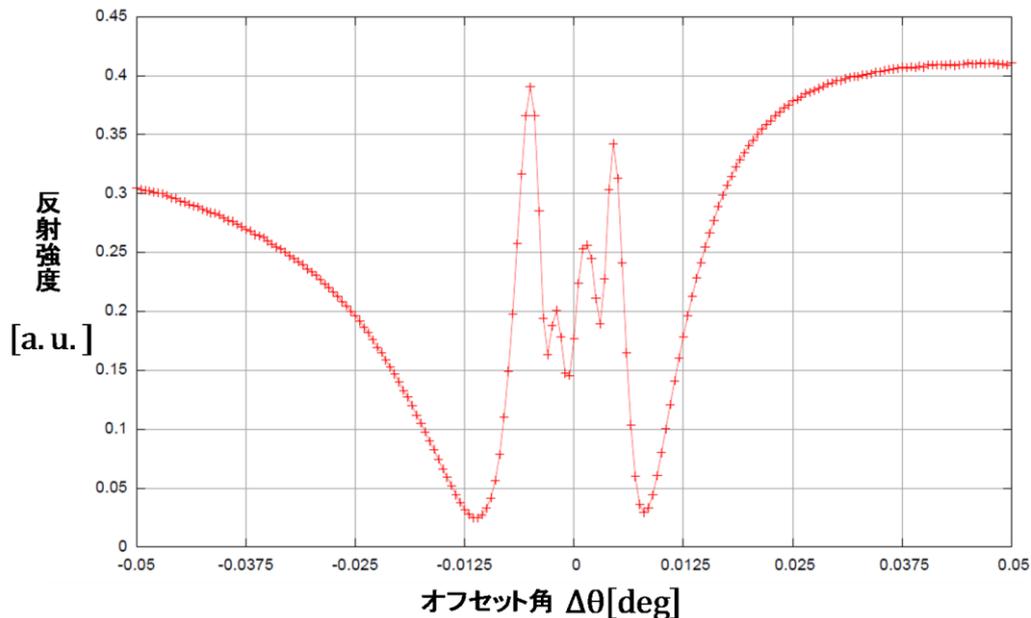


図 3.5: 移相子のオフセット角 $\Delta\theta$ に対する反射強度の変化

理論的には左右対称なプロファイルが得られるはずだが、実験では左右非対称なプロファイルが得られた。これは、入射 X 線が完全な垂直偏光ではなく楕円偏光だったためか、あるいは移相子に用いたダイヤモンド結晶内部に歪みや欠陥があったためと考えられる。

この結果から $\Delta\theta = 0.25^\circ$ では σ 偏光（垂直偏光）、 $\Delta\theta = 0.0075^\circ$ では π 偏光（水平偏光）、 $\Delta\theta = -0.03^\circ, 0.014^\circ$ では円偏光が作られていると推定できる。一般にこの方法では左右円偏光の区別はできないが、今回は移相子で円偏光を作成したので理論的に円偏光の回転方向を決定することができる。その結果、 $\Delta\theta = -0.03^\circ$ では左回り円偏光（ $\mathbf{P} = (0 \ 0 \ -1)$ ）、 $\Delta\theta = 0.014^\circ$ では右回り円偏光（ $\mathbf{P} = (0 \ 0 \ 1)$ ）であることが分かった。

3.2.2 多波回折の検出実験

多波回折の検出

主反射面 $(\bar{2} \ \bar{2} \ \bar{2})$ に関して $\phi = 3^\circ$ 付近から $\phi = -57^\circ$ 付近まで約 60° の範囲にわたって Renninger scan を行った結果、図 3.6～図 3.11 のような反射強度曲線が得られた。なお、方位角 ϕ の原点は図 3.4 のようにオリフラ側（オリフラ位置 $(0 \ 1 \ -1)$ ）からビームが入射する場合に対応している。

方位角 ϕ の刻み幅は 0.01° 、一点当たりの測定時間は 0.5 秒である。 10° 測定することに入射角の調整を行っているため、反射強度曲線（赤線）は断続している。しかし、この実験の目的は同時回折条件を満たす方位角を見つけることなので、断続していても問題はない。図には、波長が $\lambda = 1.239 \text{ \AA}$ のとき方位角の理論値とそれに対応する遠回り反射の面

指数も表示してある（紫線）。

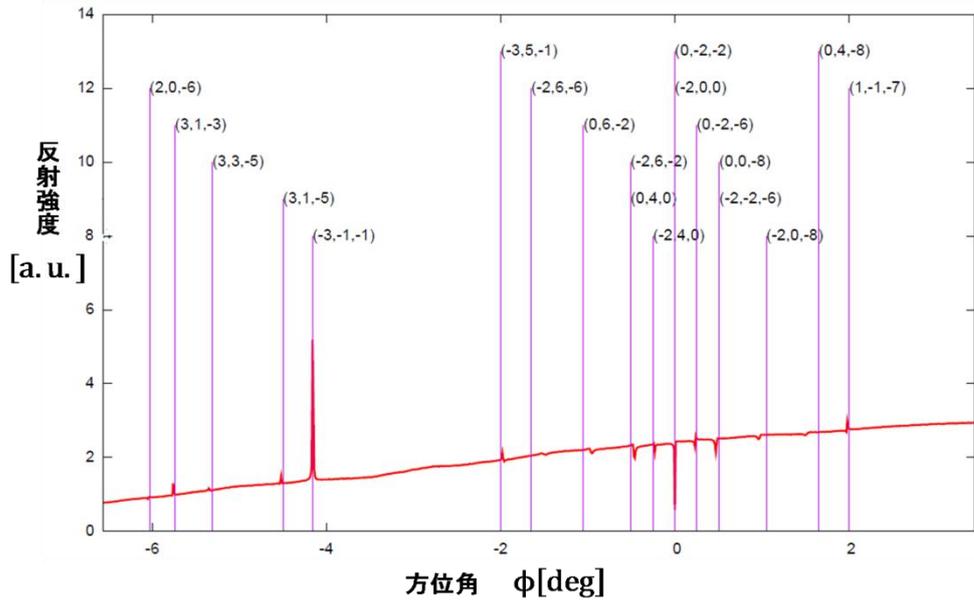


図 3.6: Renninger scan の結果 (1) $-6.56^\circ \leq \phi \leq 3.44^\circ$

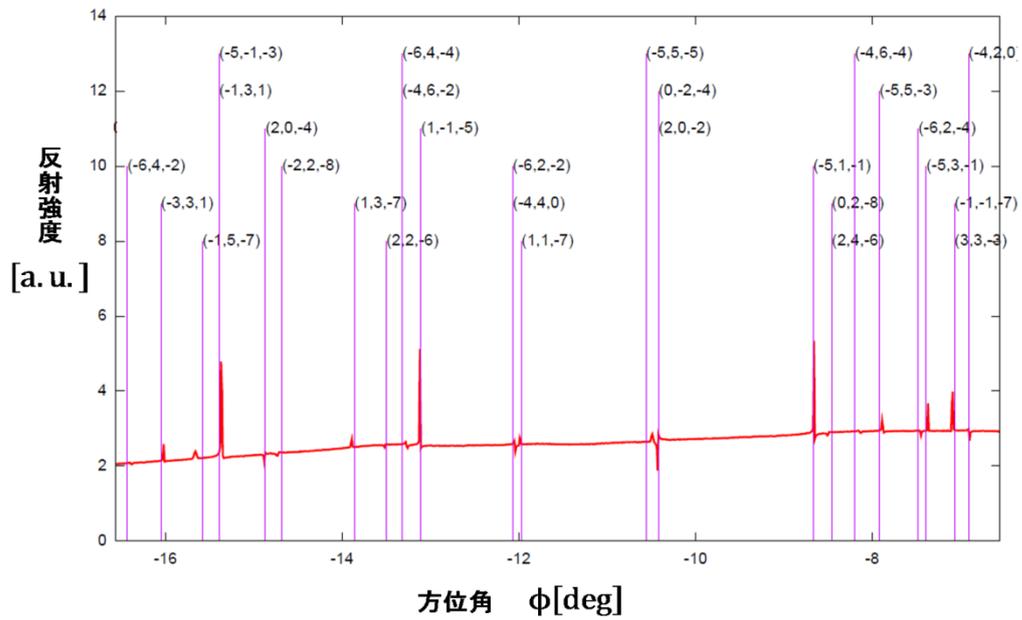


図 3.7: Renninger scan の結果 (2) $-16.56^\circ \leq \phi \leq -6.56^\circ$

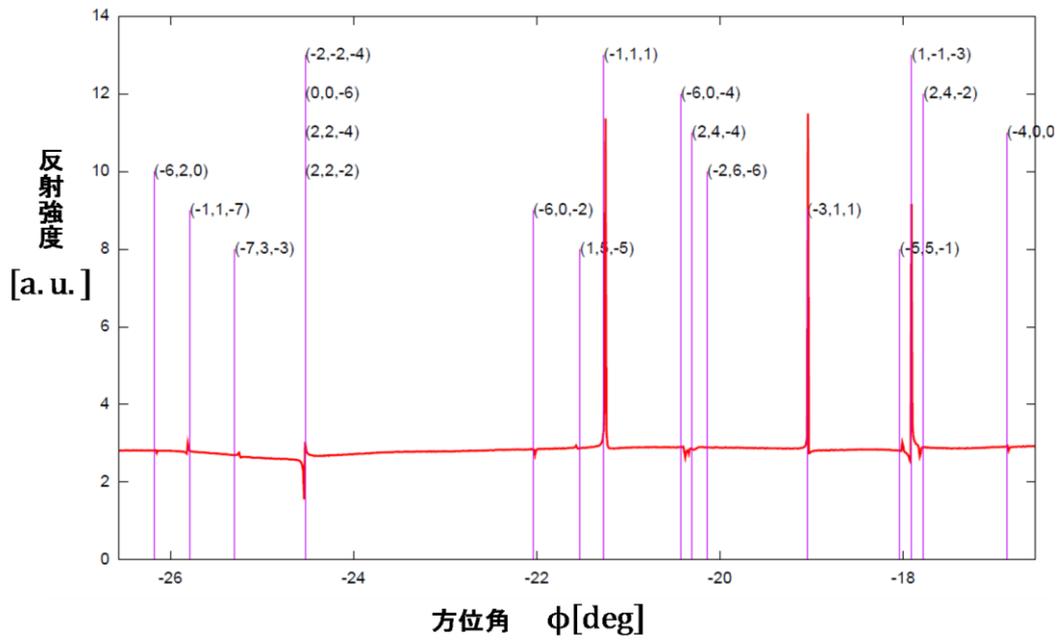


図 3.8: Renninger scan の結果 (3) $-26.56^\circ \leq \phi \leq -16.56^\circ$

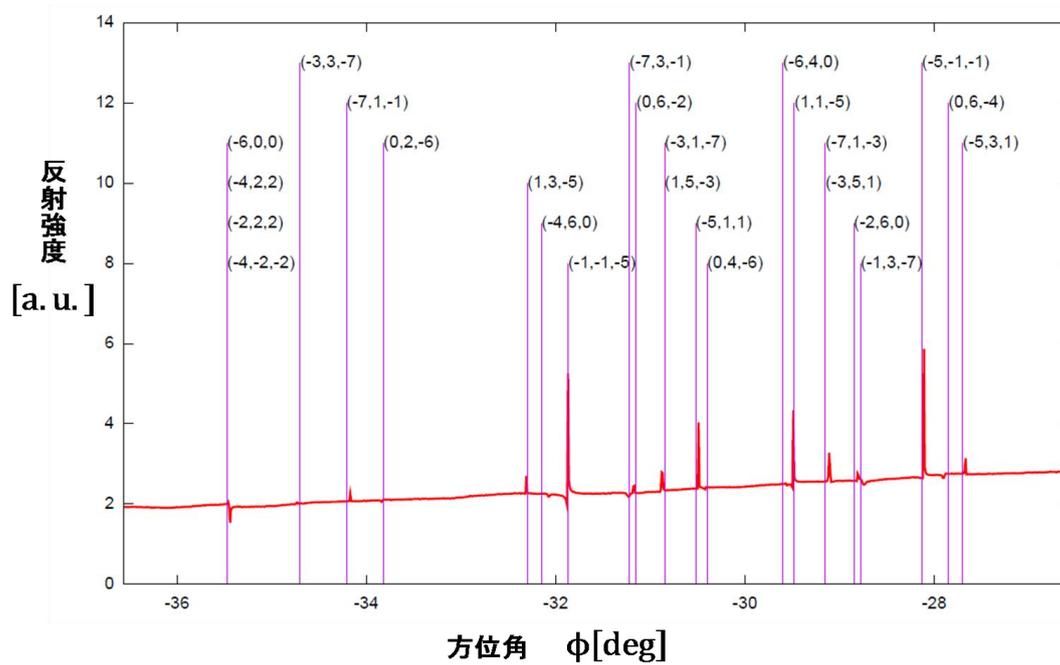


図 3.9: Renninger scan の結果 (4) $-36.56^\circ \leq \phi \leq -26.56^\circ$

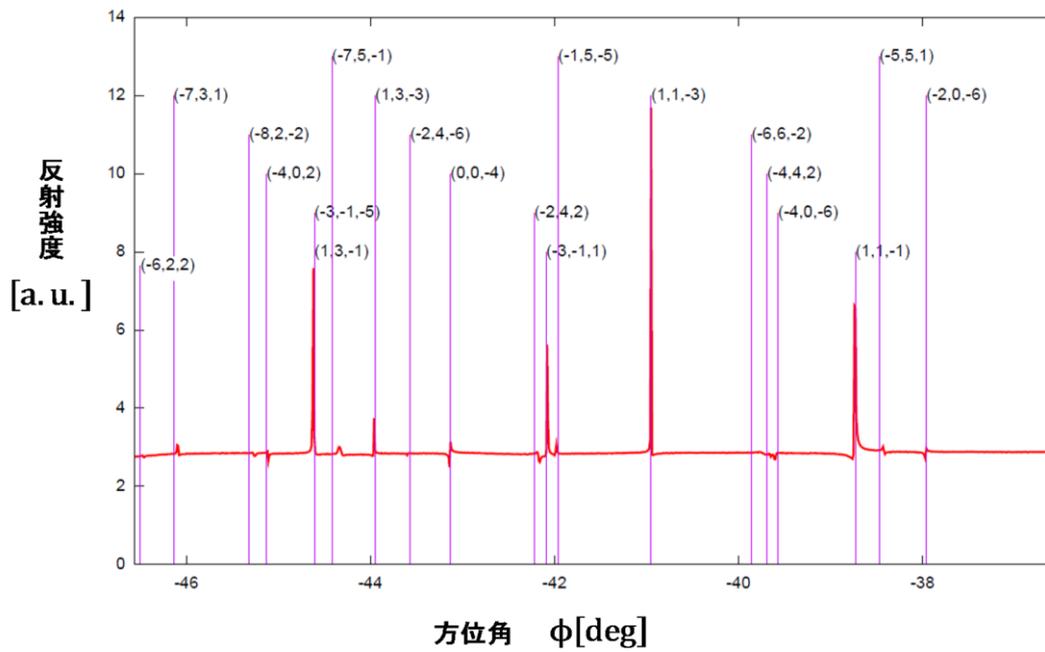


図 3.10: Renninger scan の結果 (5) $-46.56^\circ \leq \phi \leq -36.56^\circ$

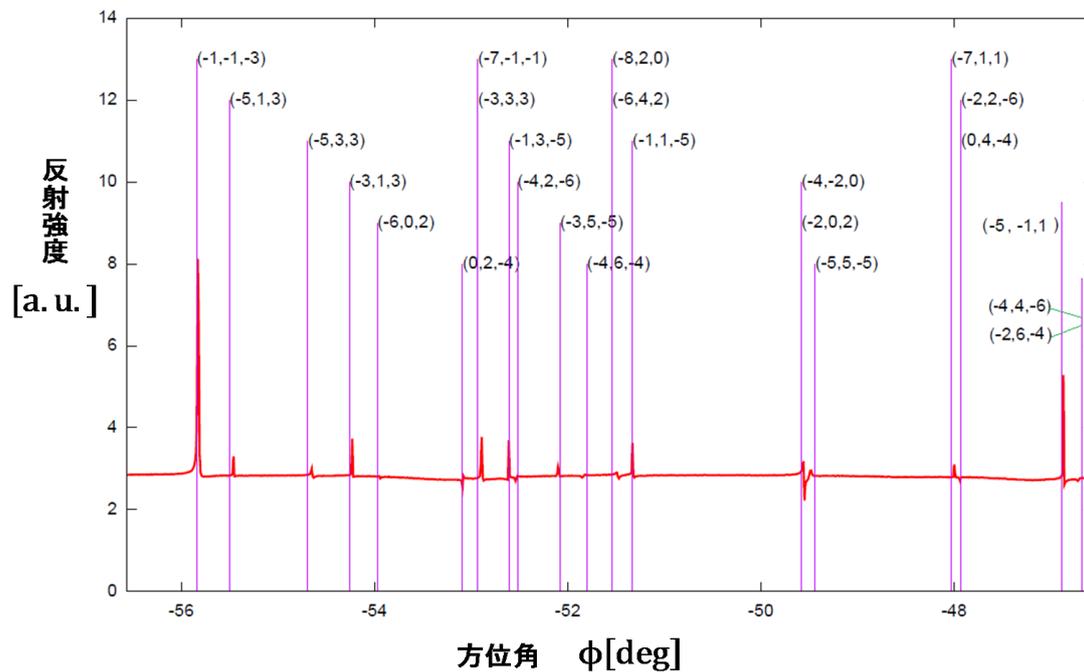


図 3.11: Renninger scan の結果 (6) $-56.56^\circ \leq \phi \leq -46.56^\circ$

これらの図から $\phi = 0^\circ$ と 30° の付近に対称中心が存在することが分かる。この対称性から $\phi = 0^\circ$ の位置を正確に決定することができた。

理想的な実験条件下では、方位角 ϕ が変化しても、多波回折が生じない所での主反射の強度は常に一定のはずである。しかし、得られた実験結果を見ると、例えば $\phi = -20^\circ$ 付近から $\phi = 3^\circ$ 付近までの間のように、反射強度曲線が全体的に右上がりとなる区間が存在する。これは GaAs (222) 結晶のあおり角調整誤差が数秒程度存在していたためである。

多波回折が検出される方位角について調べると、実験値と理論値の間にわずかな差が見られるケースもある。そのようなケースは波長の変化に敏感なケースに相当し、計算に使用した波長と実際の波長がわずかに食い違っていたために生じたものである。

図 3.6～図 3.11 を見ると、多波回折が生じる角度で反射強度が増大するケースと減少するケースがあることがわかる。反射強度が減少するのは遠回り反射の面指数がすべて偶数のときであり、増大するのはすべて奇数のときである。

X 線の波長の算出

$\phi = 0^\circ$ 付近の反射強度曲線から使用した X 線の波長を精密に算出することができる。

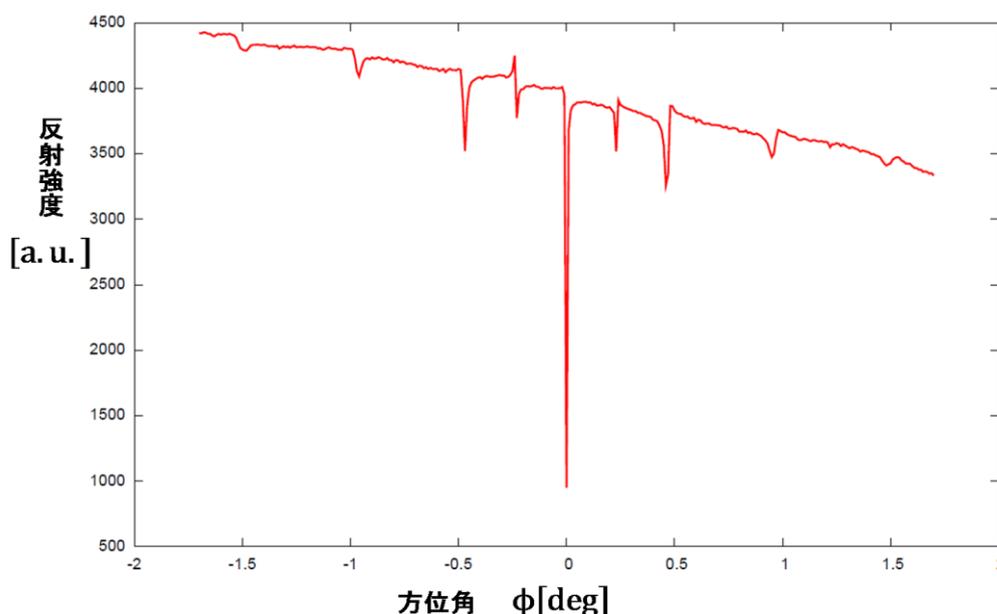


図 3.12: $-2^\circ \leq \phi \leq 2^\circ$ の区間の Renninger scan 反射強度曲線

波長の算出にあたっては、まず方位角 ϕ の原点を正確に求める必要がある。これには遠回り反射の面指数が $(0\bar{2}\bar{2})$ 、 $(\bar{2}00)$ である多波回折を利用した。この多波回折は波長に関わらず $\phi = 0$ で生じるので、その点を方位角の原点とした。次に、波長の決定には遠回り反射の面指数が $(0\bar{2}\bar{6})$ である多波回折を利用した。この多波回折は、 $\lambda = 1.234\text{\AA}$ のとき $\phi = 0^\circ$ 、 $\lambda = 1.240\text{\AA}$ のとき $\phi = 0.30^\circ$ で生じる。波長が $1.234\text{\AA} \leq \lambda \leq 1.240\text{\AA}$ の間で変化するとき、それに応じて ϕ の位置も線形に変化する。実験では $\phi = 0.25^\circ$ で多波回折が生じたので、これから波長を $\lambda = 1.239\text{\AA}$ と見積もることができた。

3.2.3 多波回折を用いた偏光解析実験

1次元測定の結果

偏光解析を行うために、多波回折が生じる方位角付近で Renninger Scan を行った。代表的な例として、 $\phi = -28.13^\circ$ 付近で得られた実験結果を図 3.13～図 3.16 に示す。遠回り反射の指数は $(\bar{5} \bar{1} \bar{1})$ である。横軸 $\Delta\phi$ は多波回折条件を満たす方位角からのずれの角である。 $\Delta\phi = -0.08^\circ$ から $\Delta\phi = 0.08^\circ$ の範囲を 0.002° の刻み幅で測定した。一点当たりの測定時間 0.5 秒である。

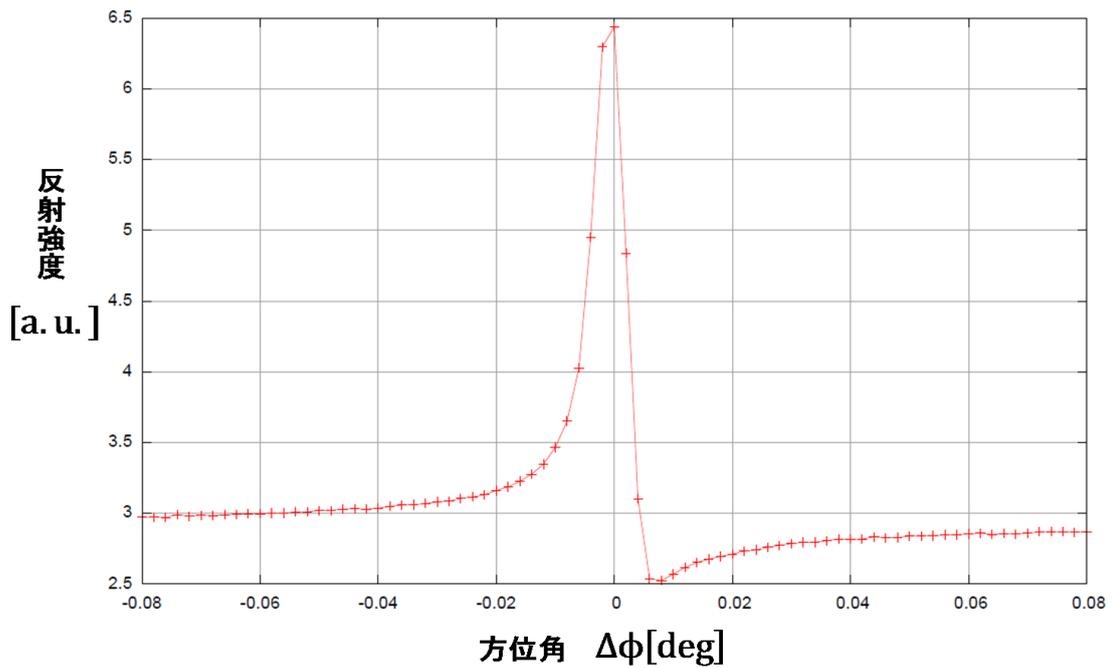


図 3.13: 反射強度曲線(1)

移相子のオフセット角が $\Delta\theta = -0.03^\circ$ の場合。入射ビームは左回り円偏光。

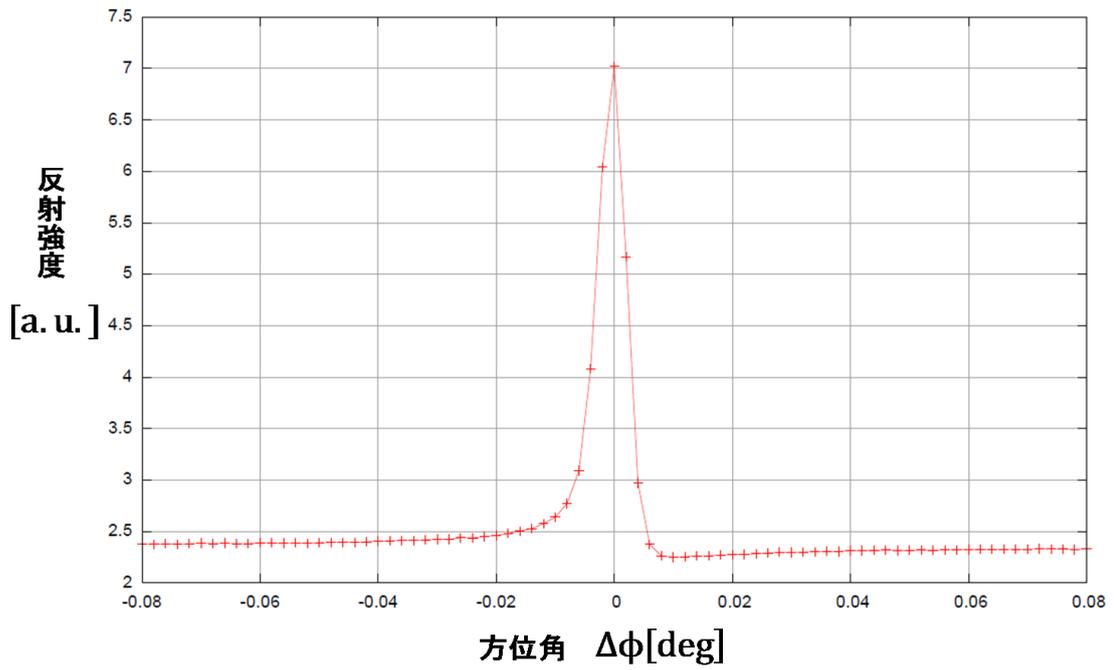


図 3.14: 反射強度曲線 (2)

移相子のオフセット角が $\Delta\theta = 0.0075^\circ$ の場合。入射ビームは π 偏光 (水平偏光)。

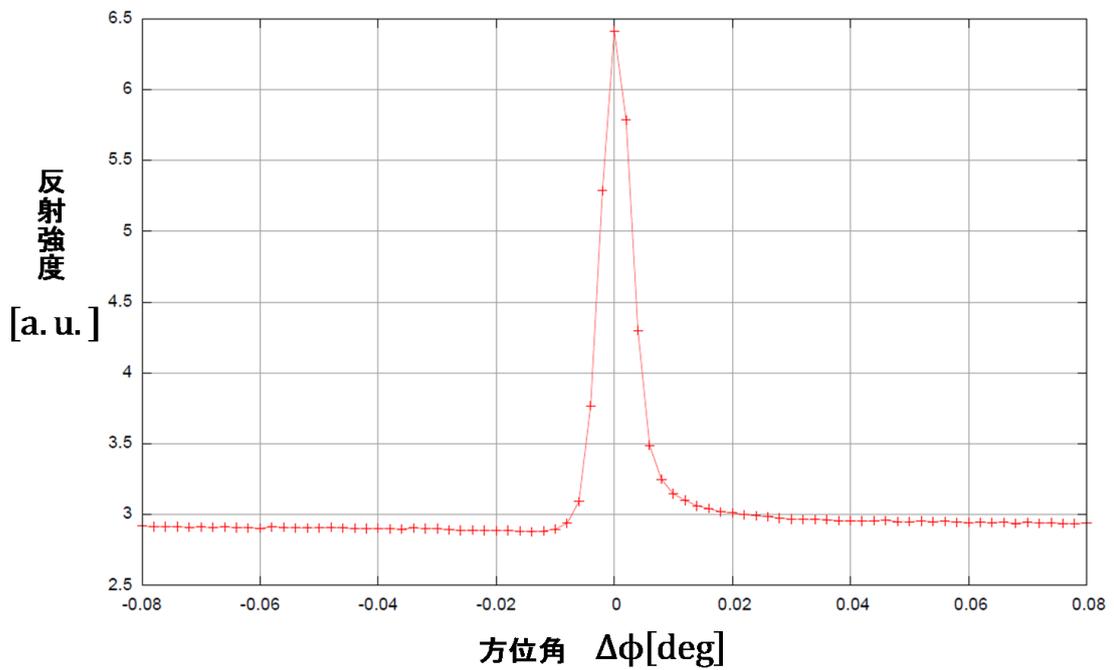


図 3.15: 反射強度曲線 (3)

移相子のオフセット角が $\Delta\theta = 0.014^\circ$ の場合。入射ビームは右回り円偏光。

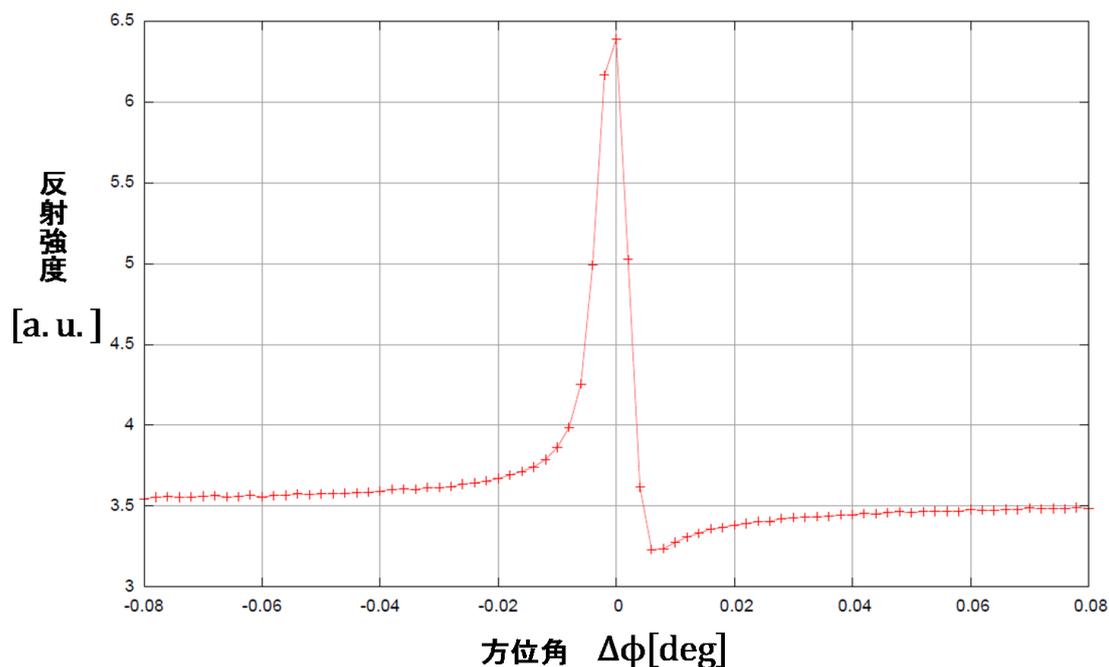


図 3.16: 反射強度曲線 (4)

移相子のオフセット角が $\Delta\theta = 0.25^\circ$ の場合。入射ビームは σ 偏光 (垂直偏光)。

いずれの場合も、 $\Delta\phi = 0$ に対して非対称なプロファイルが得られている。この非対称の度合いは偏光によって異なる。第 2 章で示した X 線多波回折の運動学的回折理論によると、プロファイルは双曲線になるはずである。実験結果を見ると、そのように双曲線状になっている区間は $|\Delta\phi| \gtrsim 0.01^\circ$ の領域である。したがって、この区間では第 2 章で示した摂動論が適用可能と考えられる。

この結果をもとに $1/\Delta\phi$ に対して $\Delta I/I_{\text{main}}$ をプロットしたところ、図 3.17~図 3.20 のグラフが得られた。

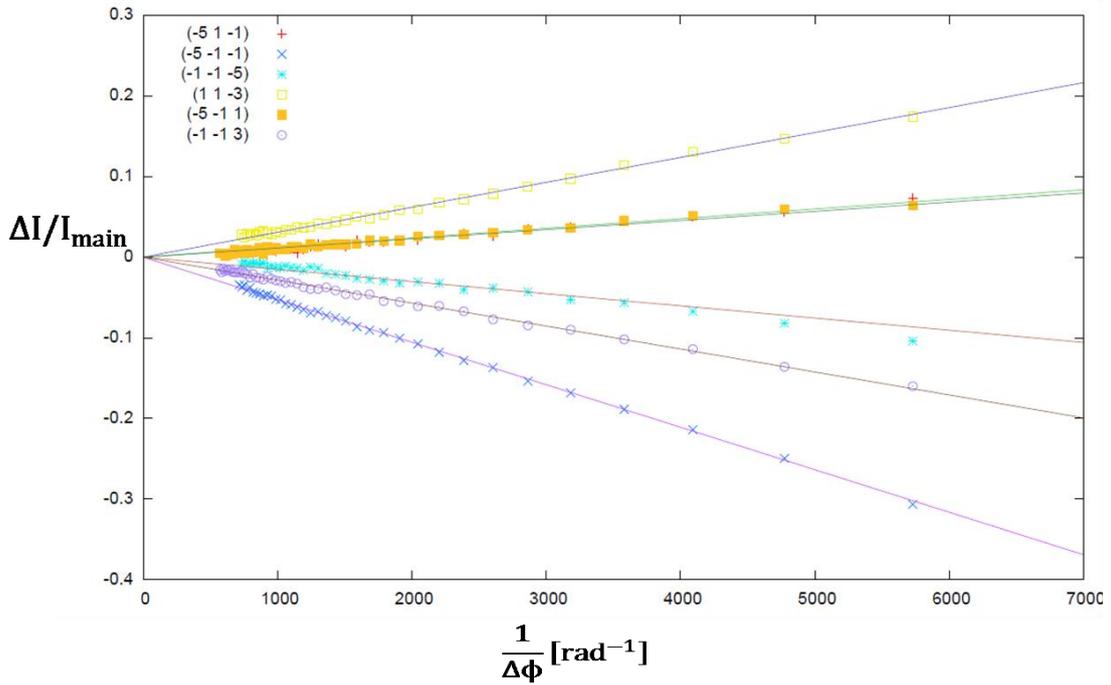


図 3.17: 1次元測定の結果 (1)

移相子のオフセット角が $\Delta\theta = -0.03^\circ$ の場合。入射ビームは左回り円偏光。

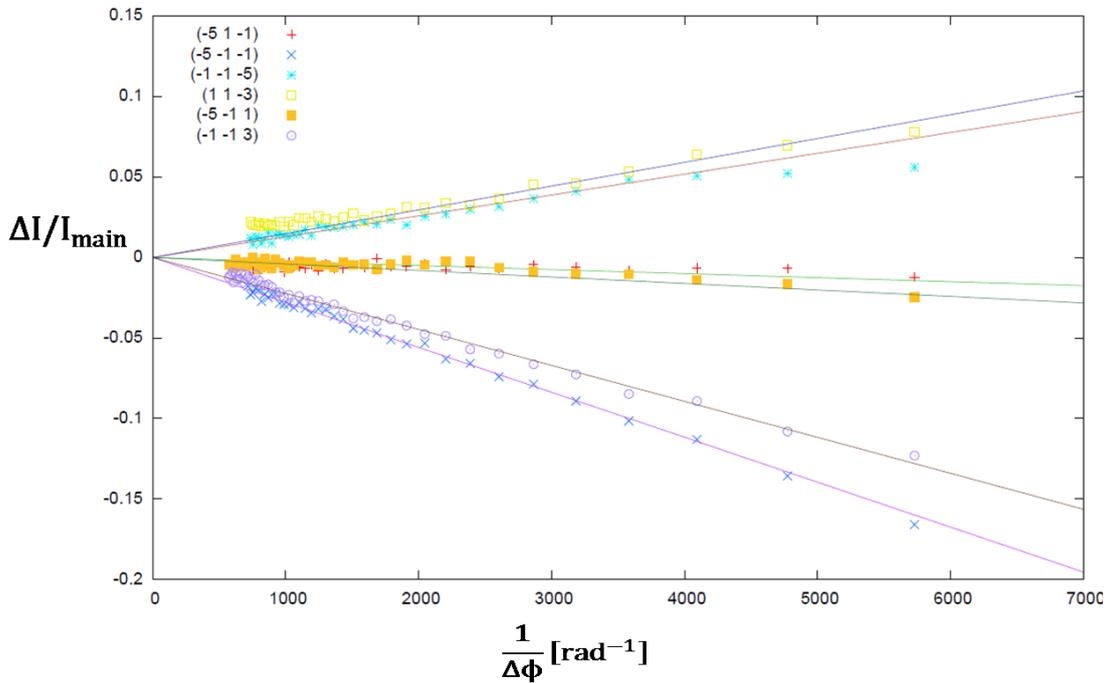


図 3.18: 1次元測定の結果 (2)

移相子のオフセット角が $\Delta\theta = 0.0075^\circ$ の場合。入射ビームは π 偏光 (水平偏光)。

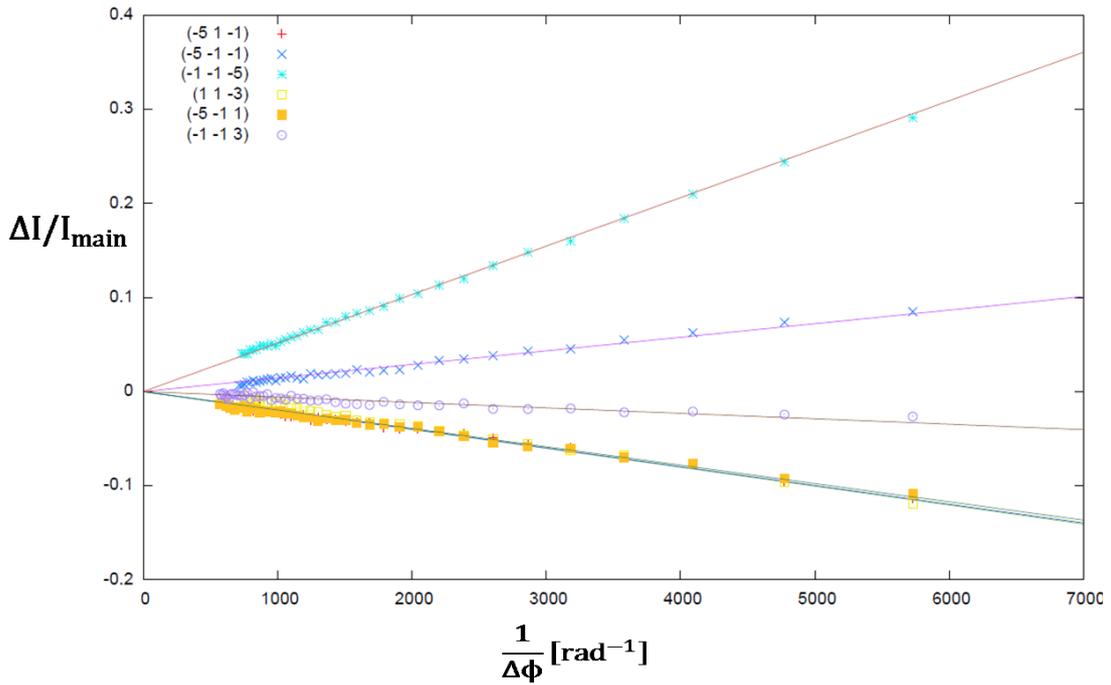


図 3.19: 1次元測定の結果 (3)

移相子のオフセット角が $\Delta\theta = 0.014^\circ$ の場合。入射ビームは右回り円偏光。

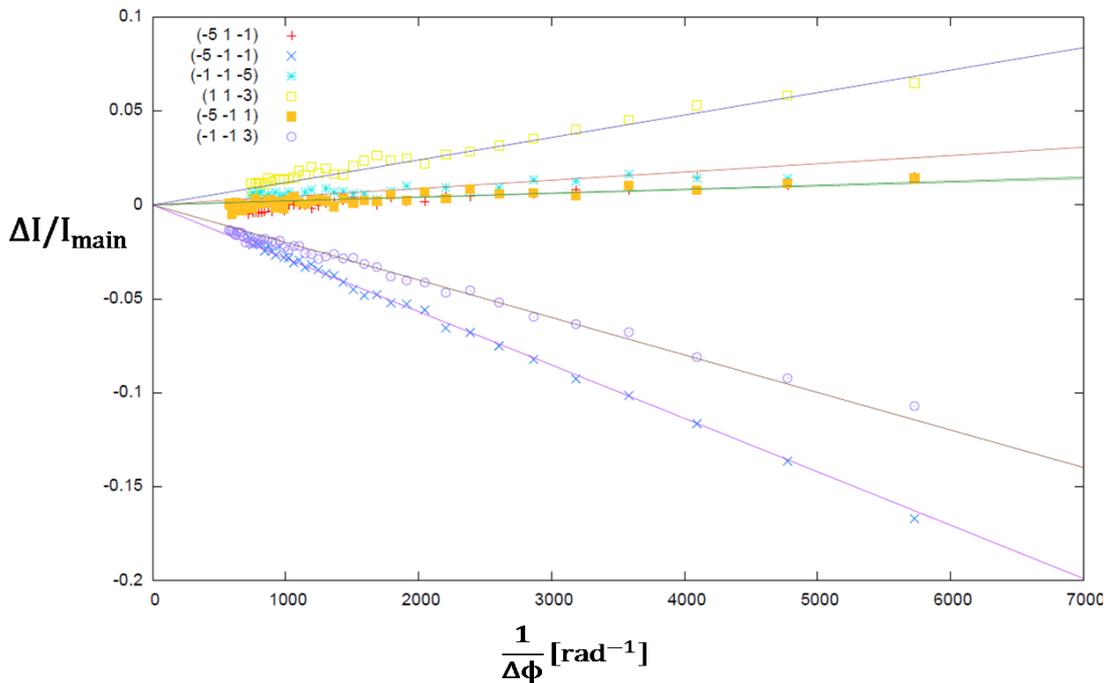


図 3.20: 1次元測定の結果 (4)

移相子のオフセット角が $\Delta\theta = 0.25^\circ$ の場合。入射ビームは σ 偏光 (垂直偏光)。

1次元測定の結果、 $1/\Delta\phi$ に対して $\Delta I/I_{\text{main}}$ が線形に変化することが確認された。

2次元測定の結果

2次元測定では、方位角 ϕ を変えた各点で θ 軸に対する回折強度曲線を測定した。得られた結果の代表例を図 3.21～図 3.24 に示す。遠回り反射の面指数は $(\bar{5}\bar{1}\bar{1})$ である。グラフの縦軸 $\Delta\phi$ の範囲は $-0.08^\circ \leq \Delta\phi \leq 0.08^\circ$ 、刻み幅は 0.002° である。横軸 $\Delta\theta$ の範囲は $-20'' \leq \Delta\theta \leq 20''$ 、刻み幅は $0.5''$ である。一点当たりの測定時間は 0.5 秒で、測定全体に要した時間はおよそ 1 時間であった。

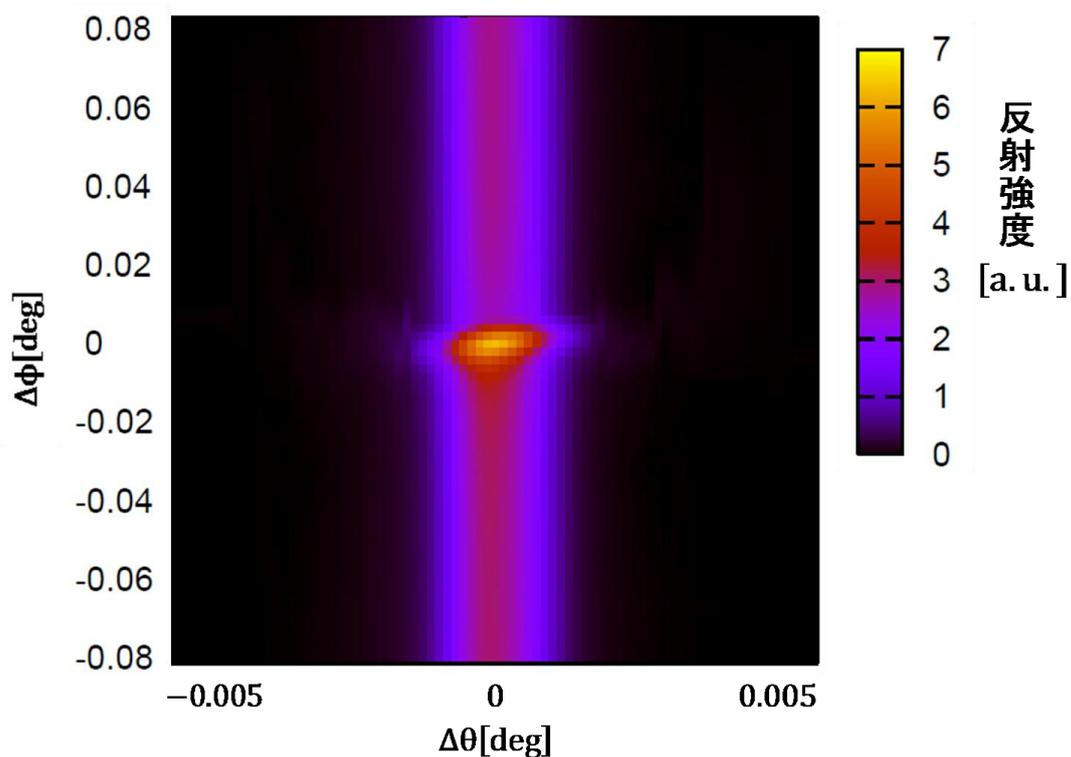


図 3.21: 反射強度の 2 次元表示 (1)

移相子のオフセット角が $\Delta\theta = -0.03^\circ$ の場合。入射ビームは左回り円偏光。

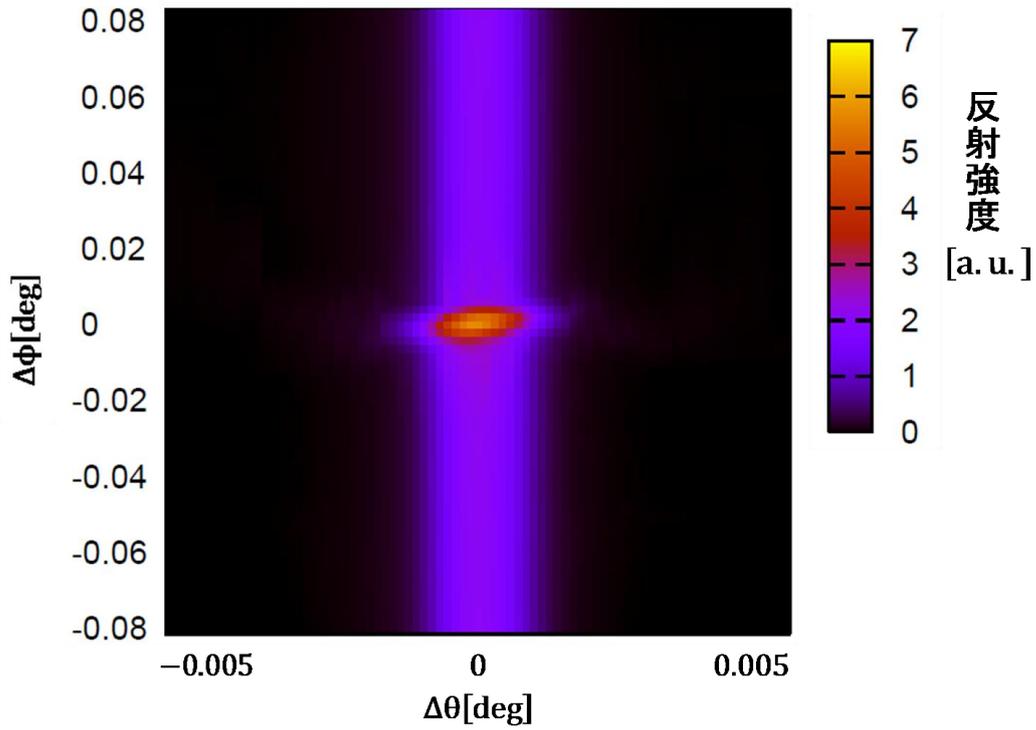


図 3.22: 反射強度の 2 次元表示 (2)

移相子のオフセット角が $\Delta\theta = 0.0075^\circ$ の場合。入射ビームは π 偏光 (水平偏光)。

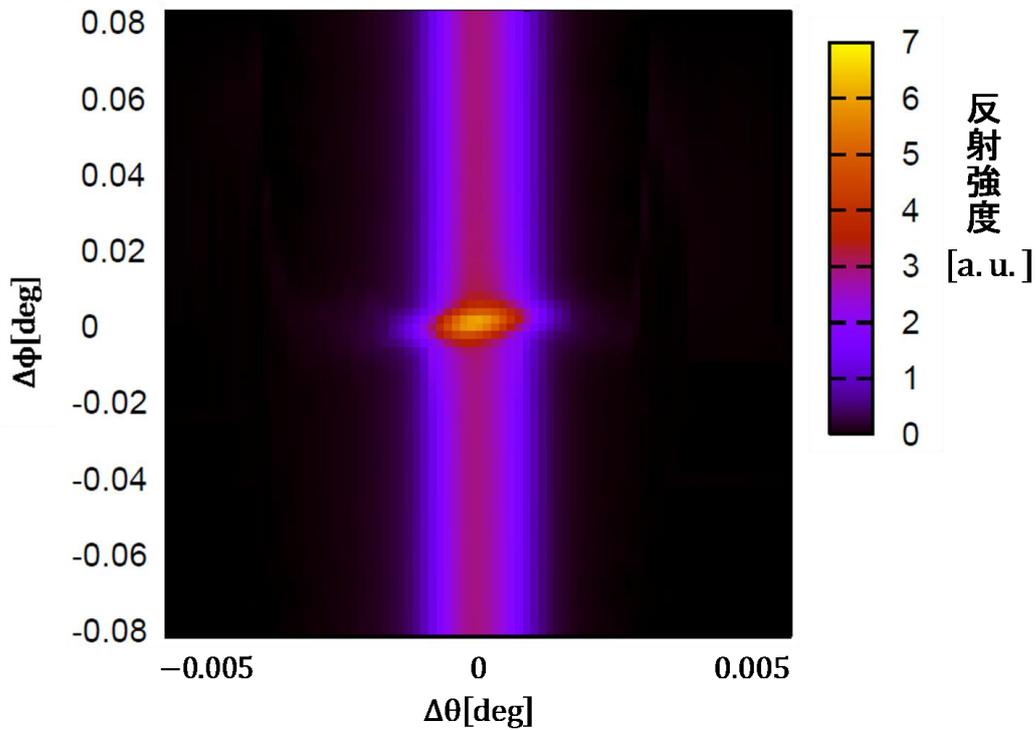


図 3.23: 反射強度の 2 次元表示 (3)

移相子のオフセット角が $\Delta\theta = 0.014^\circ$ の場合。入射ビームは右回り円偏光。

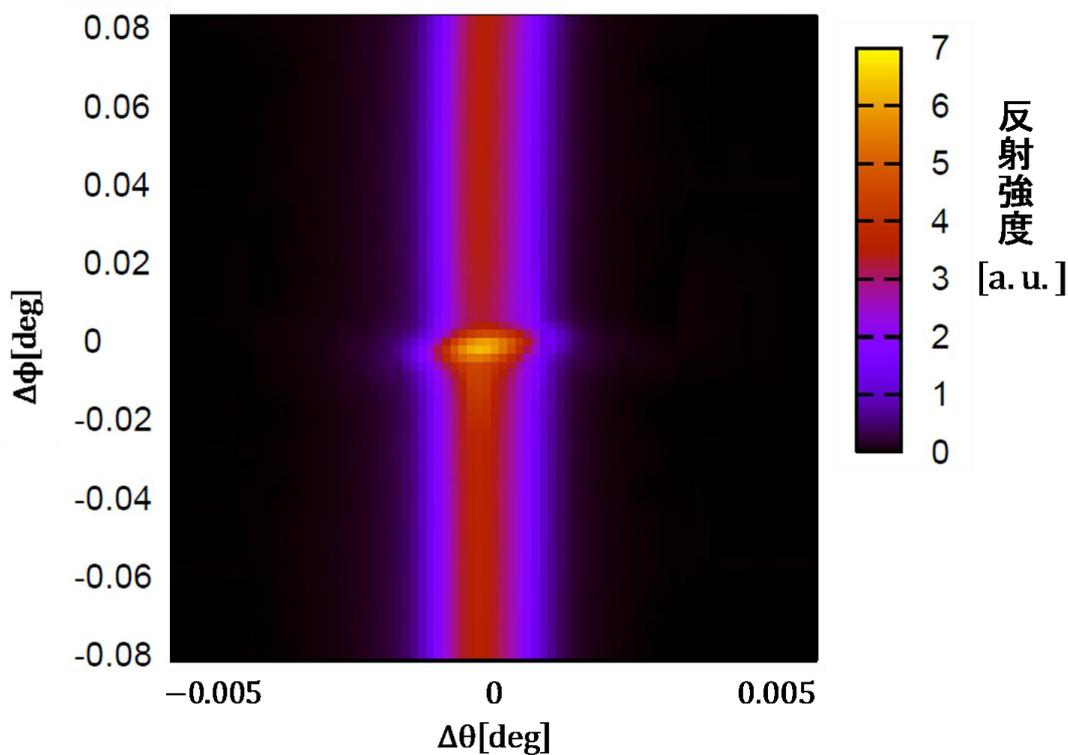


図 3.24: 反射強度の 2 次元表示 (4)

移相子のオフセット角が $\Delta\theta = 0.25^\circ$ の場合。入射ビームは σ 偏光 (垂直偏光)。

この 2 次元データから反射強度曲線を求めるために、測定データを入射ビーム強度で規格化し、方位角 ϕ ごとに θ 軸に関する積分反射強度計算した。こうして得られた反射強度曲線を遠回り反射の面指数が $(\bar{5} \bar{1} \bar{1})$ であるデータについて図 3.25~図 3.28 に示す。1 次元測定の結果と比較すると点のぼらつきが大きい、これは θ 軸の刻み幅が十分小さくなかったためと考えられる。

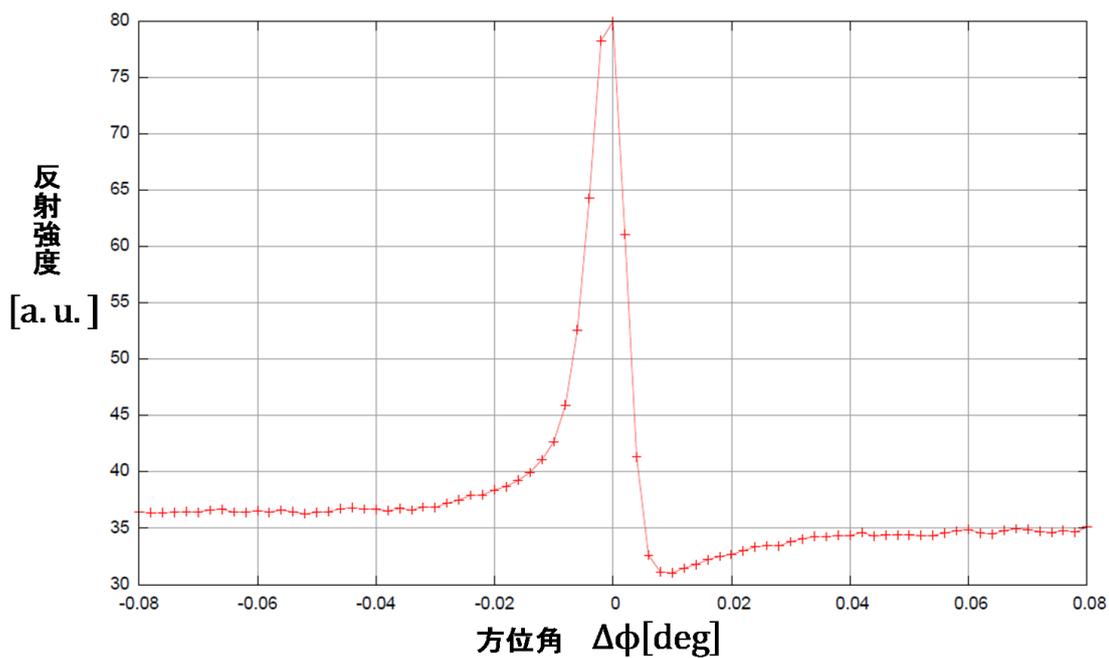


図 3.25: 積分反射強度曲線 (1)

移相子のオフセット角が $\Delta\theta = -0.03^\circ$ の場合。入射ビームは左回り円偏光。

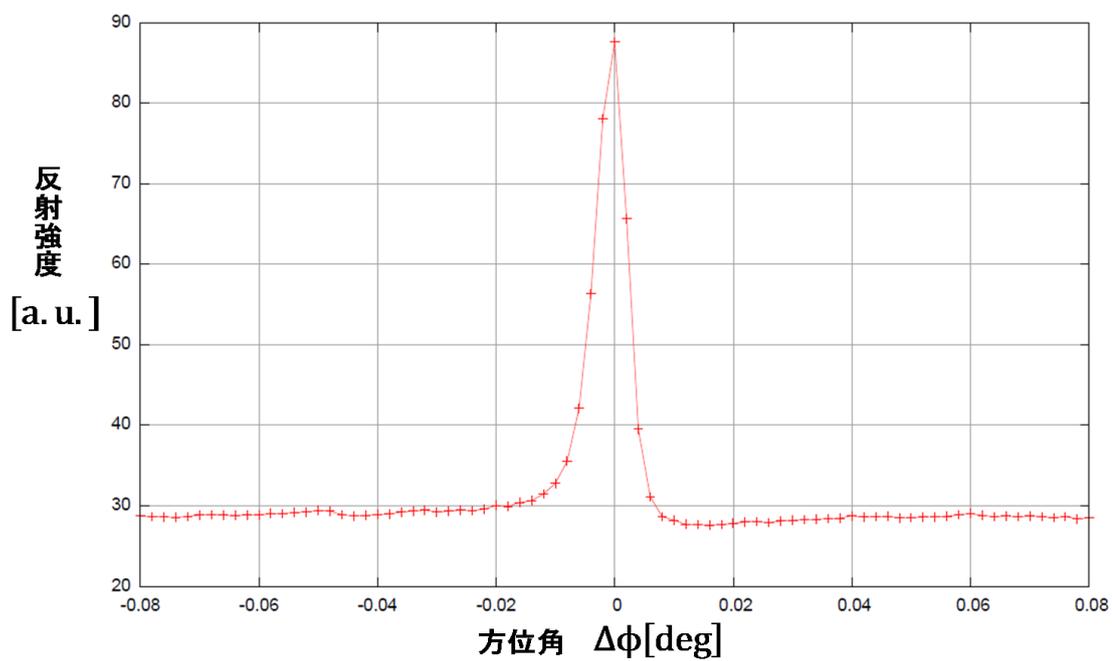


図 3.26: 積分反射強度曲線 (2)

移相子のオフセット角が $\Delta\theta = 0.0075^\circ$ の場合。入射ビームは π 偏光 (水平偏光)。

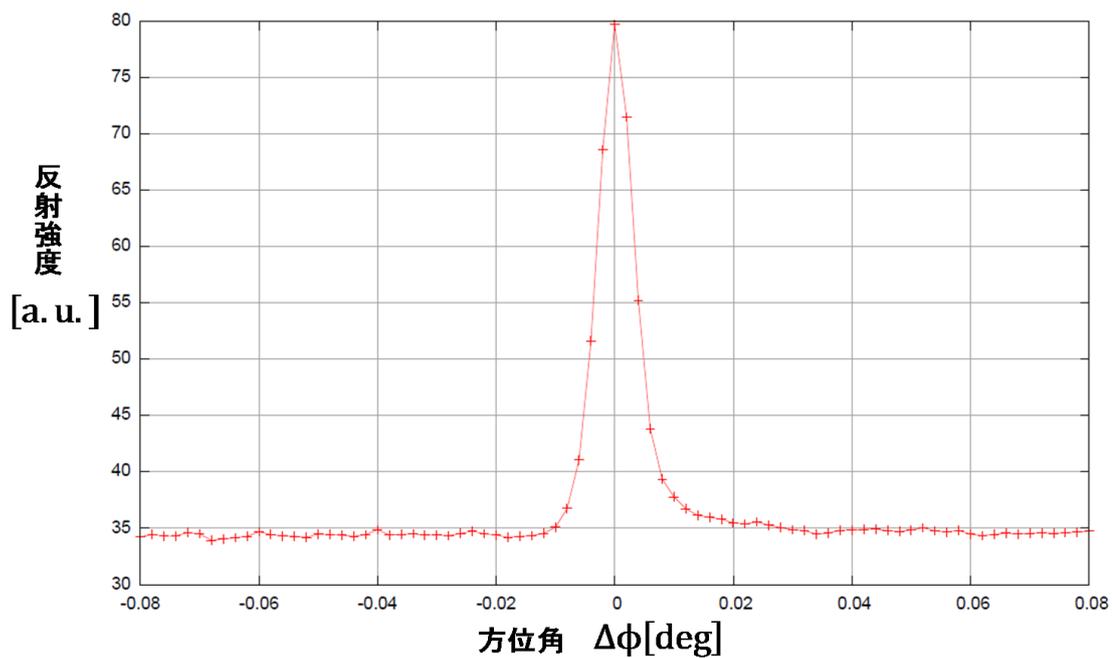


図 3.27: 積分反射強度曲線 (3)

移相子のオフセット角が $\Delta\theta = 0.014^\circ$ の場合。入射ビームは右回り円偏光。

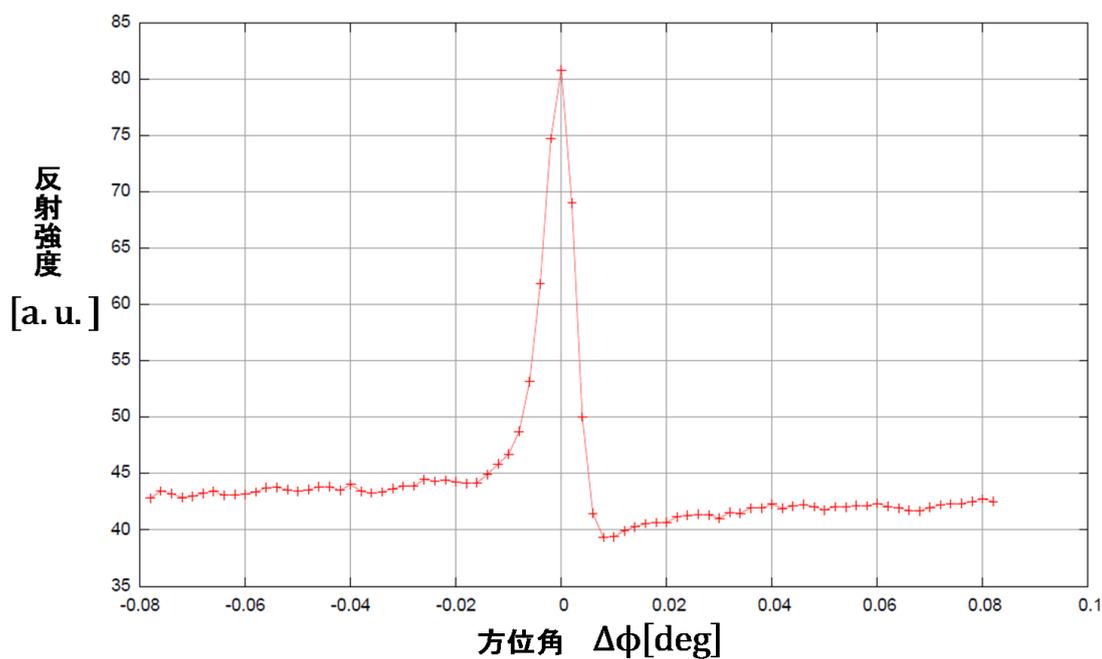


図 3.28: 積分反射強度曲線 (4)

移相子のオフセット角が $\Delta\theta = 0.25^\circ$ の場合。入射ビームは σ 偏光 (垂直偏光)。

この反射強度曲線からさらに $1/\Delta\phi$ に対して $\Delta I/I_{\text{main}}$ をプロットした。得られた結果を図 3.29～図 3.32 に示す。

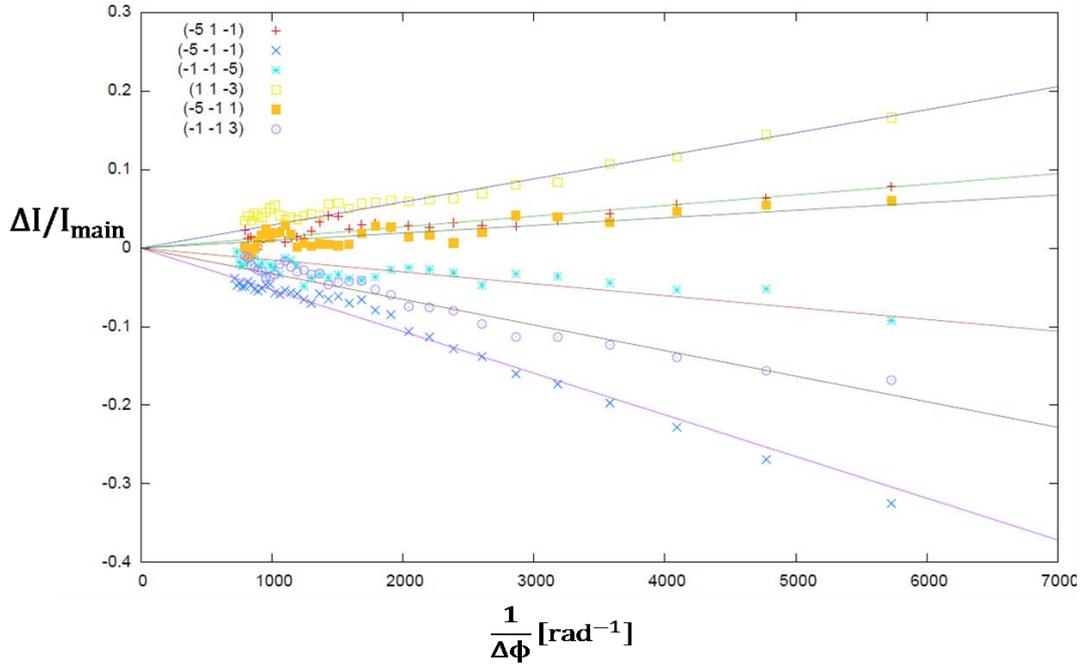


図 3.29: 2次元測定の結果 (1)

移相子のオフセット角が $\Delta\theta = -0.03^\circ$ の場合。入射ビームは左回り円偏光。

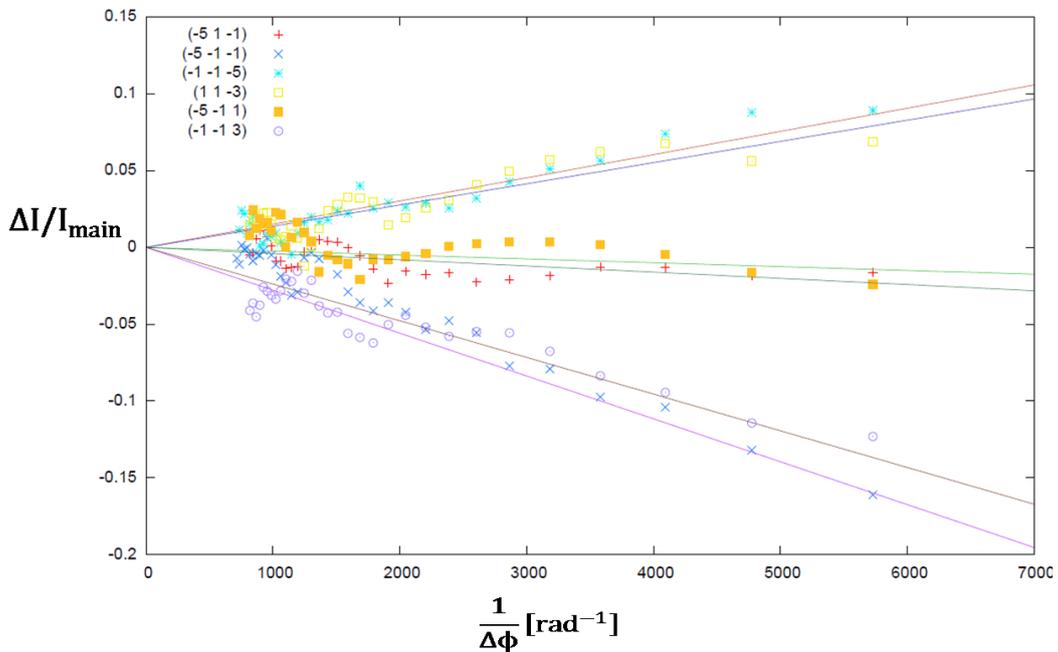


図 3.30: 2次元測定の結果 (2)

移相子のオフセット角が $\Delta\theta = 0.0075^\circ$ の場合。入射ビームは π 偏光 (水平偏光)。

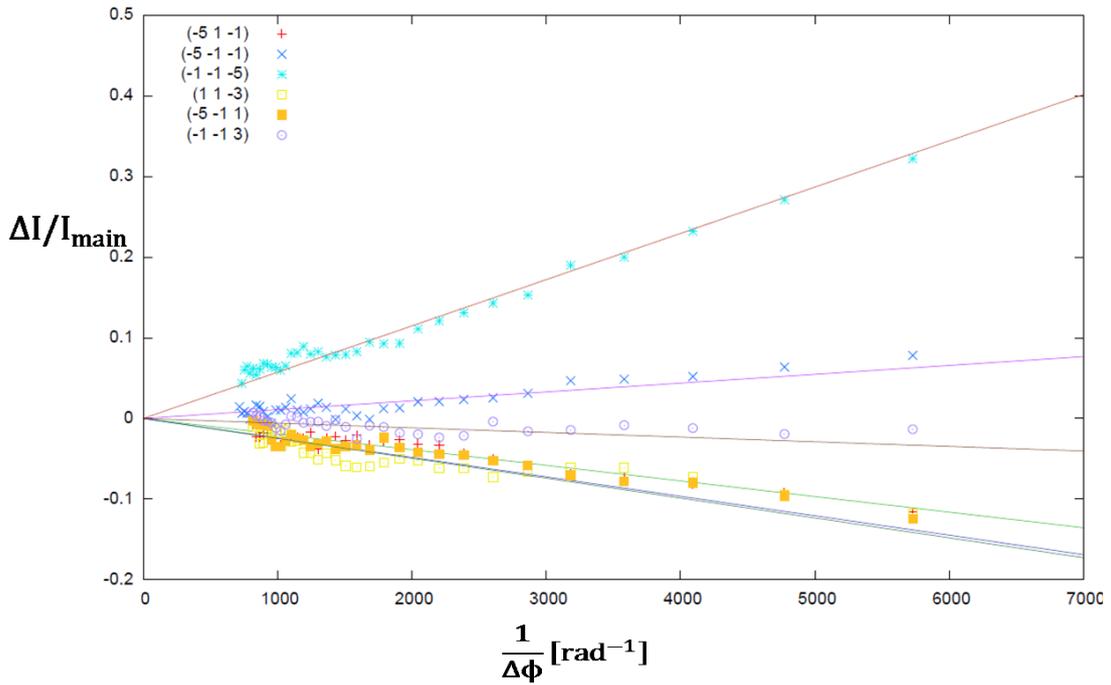


図 3.31: 2次元測定の結果 (3)

移相子のオフセット角が $\Delta\theta = 0.014^\circ$ の場合。入射ビームは右回り円偏光。

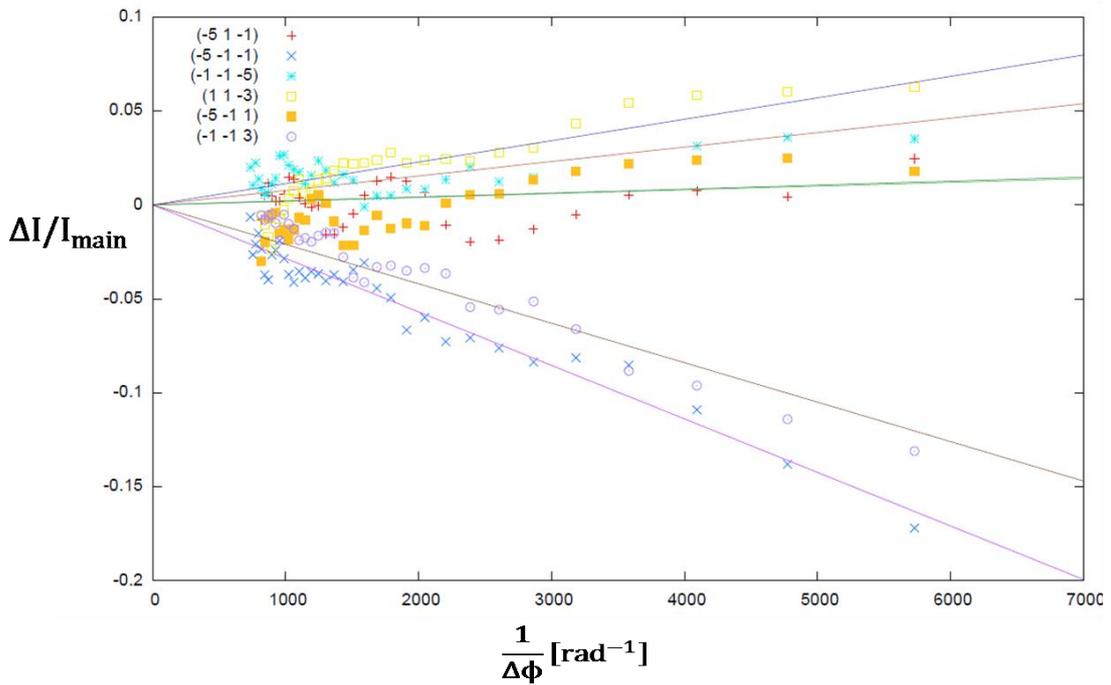


図 3.32: 2次元測定の結果 (4)

移相子のオフセット角が $\Delta\theta = 0.25^\circ$ の場合。入射ビームは σ 偏光 (垂直偏光)。

2次元測定の結果、 $1/\Delta\phi$ に対して $\Delta I/I_{\text{main}}$ が線形に変化することが確認された。

1次元測定の結果と2次元測定の結果を比較したところ、グラフの傾きは標準偏差の範囲内で一致していた。この結果は、偏光測定には1次元測定だけで十分であることを示唆しており、将来の応用を考えると非常に重要である。なお、2次元測定の結果の方が傾きのばらつきが大きかったが、これは前述したようにθ軸の刻み幅が十分小さくなかったためと考えられる。

偏光決定

1次元測定の結果を用いて偏光決定を行った。用いた理論式は式 2.133

$$\frac{\Delta I(\Delta\phi)}{I_{\text{main}}} = \frac{I_{\text{int}}(\phi_L + \Delta\phi) - I_{\text{int}}(\phi_L - \Delta\phi)}{I_{\text{main}}}$$

$$= \frac{1}{\Delta\phi \cos\theta \lambda \sigma_0 \cdot L} \cdot \frac{\{[A_{\sigma\sigma} \cos \delta_{\text{HL}} (1 + P_1) + A_{\pi\sigma} \cos \delta_{\text{HL}} P_2 - A_{\pi\sigma} \sin \delta_{\text{HL}} P_3] + \cos 2\theta [A_{\pi\pi} \cos \delta_{\text{HL}} (1 - P_1) + A_{\sigma\pi} \cos \delta_{\text{HL}} P_2 + A_{\sigma\pi} \sin \delta_{\text{HL}} P_3]\}}{\frac{1+P_1}{2} + \frac{1-P_1}{2} \cos^2 2\theta}$$

である。各パラメータの計算値を表 3.4 に示す。

表 3.4: 偏光決定に必要な各パラメータの計算値。

計算には、原子散乱因子 [27] と異常分散[28] のテーブルを用いた。

φ[deg]	L (面指数)	A _{σσ} /Γ	A _{πσ} /Γ	A _{σπ} /Γ	A _{ππ} /Γ	σ ₀ · L · λ/a	δ _{HL} [deg]
-88.13	($\bar{1} \bar{1} 3$)	553.6	142.5	401.7	499.1	-0.631	-80.14
-46.89	($\bar{5} \bar{1} 1$)	236.5	-277.7	-33.56	548.0	-0.838	80.73
-40.95	($1 1 \bar{3}$)	573.5	20.30	-355.4	767.7	0.677	81.99
-31.87	($\bar{1} \bar{1} \bar{5}$)	553.6	401.7	142.5	499.1	0.631	-80.14
-28.13	($\bar{5} \bar{1} \bar{1}$)	553.6	-401.7	-142.5	499.1	-0.631	-80.14
-8.67	($\bar{5} 1 \bar{1}$)	236.5	-277.7	-33.56	548.0	-0.838	80.73

a[Å]	λ[Å]	Γ	θ[deg]
5.653	1.239	7.622E-08	22.31

ポアンカレ偏光ベクトル P には三つのパラメータがあるので、実験結果から偏光を完全に決定するには、少なくとも三つの独立したデータが必要になる。すなわち、少なくとも三つの方位角におけるデータが必要になる。そこで、三つの方位角におけるデータを用いて最小二乗近似によるフィッティングを行い、ポアンカレ偏光ベクトル P を決定した。

φ = -40.95、-31.87、-28.13 のデータから得られた結果を表 3.5 に、φ = -46.89、-40.95、-31.87 のデータから得られた結果を表 3.6 に示す。

表 3.5 $\phi = -40.95, -31.87, -28.13$ のデータから得られたポアンカレ偏光ベクトル

$\Delta\theta$ [deg]	P_1	P_2	P_3	$ P $
-0.03	0.43	-0.57	-0.70	1.00
0.0075	0.82	-0.57	-0.04	1.00
0.014	0.17	-0.26	0.95	1.00
0.25	0.71	-0.65	-0.27	1.00

表 3.6: $\phi = -46.89, -40.95, -31.87$ のデータから得られたポアンカレ偏光ベクトル

$\Delta\theta$ [deg]	P_1	P_2	P_3	$ P $
-0.03	0.50	-0.33	-0.80	1.00
0.0075	0.93	-0.32	-0.17	1.00
0.014	0.33	0.25	0.91	1.00
0.25	0.88	-0.07	-0.46	0.99

表 3.5 のポアンカレ偏光ベクトルを元に偏光を図示した結果は図 3.33～図 3.36 のようになった。緑色の線は Si (620) 検光子結晶を用いた偏光解析実験を元に推定した偏光を図示したもの、赤色の線は表 3.5 を図示したものである。

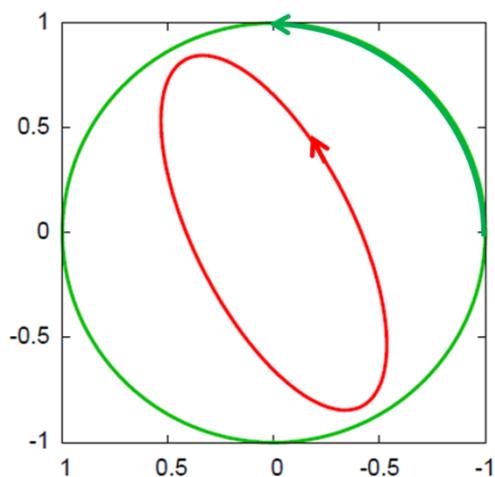


図 3.33: 偏光の図示(1)

移相子のオフセット角が $\Delta\theta = -0.03^\circ$ の場合。入射ビームは左回り円偏光。

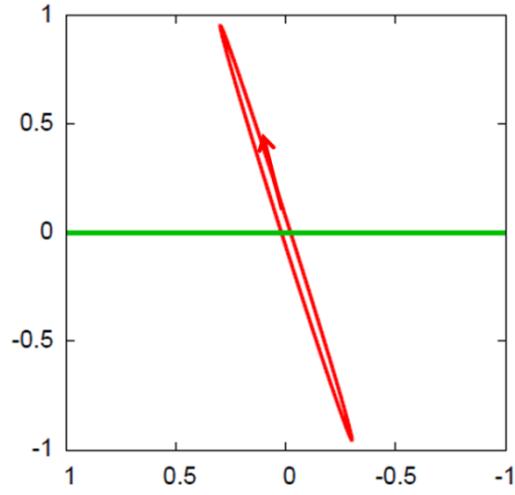


図 3.34: 偏光の図示(2)

移相子のオフセット角が $\Delta\theta = 0.0075^\circ$ の場合。入射ビームは π 偏光（水平偏光）。

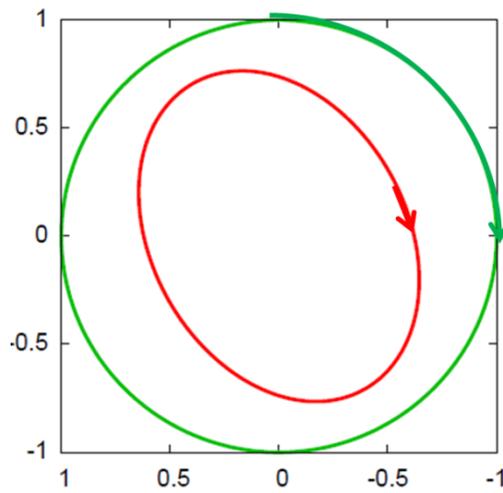


図 3.35: 偏光の図示(3)

移相子のオフセット角が $\Delta\theta = 0.014^\circ$ の場合。入射ビームは右回り円偏光。

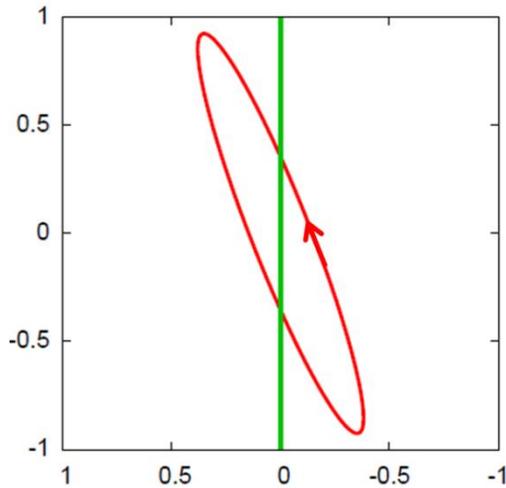


図 3.35: 偏光の図示(4)

移相子のオフセット角が $\Delta\theta = 0.25^\circ$ の場合。入射ビームは σ 偏光（垂直偏光）。

ただし図 3.33～図 3.36 は、偏光が楕円偏光であること、すなわち $(D_\sigma, D_\pi e^{i\delta})$ のように表示できることを仮定した計算結果である。縦軸が D_σ 横軸が D_π である。この仮定は $|P| \approx 1$ のときに良い近似で成り立つ。 D_σ, D_π, δ は次の式によって計算される。

$$D_\sigma^2 = \frac{1}{2}(1 + P_1)$$

$$D_\pi^2 = \frac{1}{2}(1 - P_1)$$

$$\delta = \arctan\left(\frac{P_3}{P_2}\right)$$

表 3.5 を元に D_σ, D_π, δ を計算した結果は表 3.7 のようになった。

表 3.7: D_σ, D_π, δ の値

$\Delta\theta$ [deg]	D_σ	D_π	δ [deg]
-0.03	0.85	0.53	-129
0.0075	0.95	0.30	-176
0.014	0.76	0.64	105
0.25	0.92	0.38	-157

円偏光と σ 偏光については、Si(620)の予備実験に基づいた偏光の予想と近い結果を得ることができた。特に円偏光のヘリシティを明確に識別することができた。

一方で、 π 偏光については、Si(620)の予備実験に基づいた偏光の予想とは大きく異なった。 π 偏光に相当する移相子のオフセット角 $\Delta\theta$ については、 $\Delta\theta$ に対する位相差 δ が激しく変動

する領域にある。したがって他の偏光の際と比較して、高精度でのオフセット角設定やビームの平行性が要求されることとなり、 π 偏光を狙い通りに作成できていない可能性がある。

主反射の相対強度

多波回折条件から遠く離れた方位角で観測された主反射の強度から、 P_1 を見積もることができる。これは、主反射の強度が

$$\frac{1 + P_1}{2} + \frac{1 - P_1}{2} \cos^2 22.3 \sim \frac{3}{4} + \frac{1}{4} P_1$$

という式に比例するためである（理論式 2.127 参照）。

実験で得られた主反射の強度を図 3.33 に示す。主反射の強度は六つの方位角で得られた値の平均値であり、 $\Delta\theta = 0.25^\circ$ のときの値で規格化している。

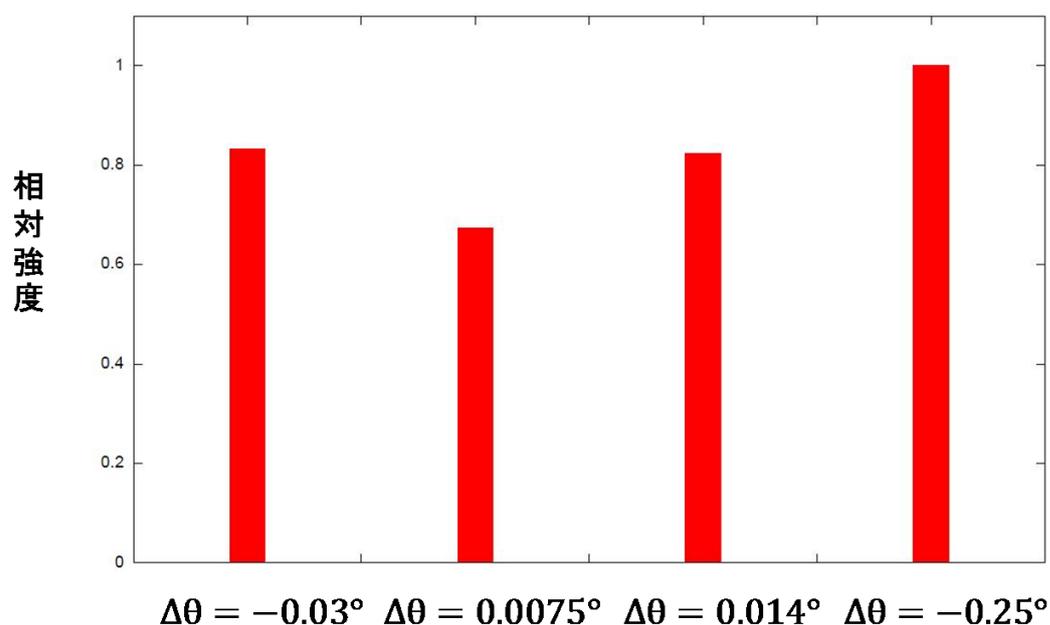


図 3.37: 主反射の相対強度

この結果から P_1 を見積もることができる。いま $\Delta\theta = 0.25^\circ$ のとき $P_1 = 1$ と仮定すると、 $\Delta\theta = -0.03^\circ$ 、 0.014° のときは $P_1 \sim 0.2$ 、 $\Delta\theta = -0.075^\circ$ のときは $P_1 \sim -0.3$ という値が得られる。

第4章 考察

本章では理論と実験結果を踏まえて、多波回折による偏光解析法の実用化に向けてなすべきことと、本研究の多波回折研究としての意義について考察する。

4.1 多波回折による偏光解析法の実用化に向けて

多波回折による偏光解析法を実用化するには、本解析法の妥当性の検証、より高い円偏光度を持つ光の生成、1次元スキャンの有効性の検証、検光子結晶の最適化が必要であると考えられる。

4.1.1 多波回折による偏光解析法の妥当性の検証

多波回折による偏光解析の妥当性を今回の実験からある程度評価することは可能である。まず、本実験は多波回折条件からわずかに離れた領域で反射強度が偏光に依存することを示した。さらに理論的に予測された

$$\frac{\Delta I(\Delta\phi)}{I_{\text{main}}} \propto \frac{1}{\Delta\phi} \quad (4.1)$$

という線形関係を確認することができた。また、円偏光及び σ 偏光に対しては理論値に近い結果が得られた。さらに円偏光のヘリシティを明確に区別する結果を得た。ただし、 π 偏光については上記の線形関係からの偏差が大きく、本手法の有効性を確認するまでには至らなかった。これは π 偏光を移相子で生成する際、移相量 δ が急激に変化する領域（オフセット角 $\Delta\theta$ がゼロに近い領域）を利用していたため偏光の混合がかなり生じていたせいだと考えられる。解決策としては例えば、光路長を t としたときに $\delta \propto t/\Delta\theta$ が成り立つことから、移相子結晶の厚さを厚くする（ t を大きくすることに対応）ことでオフセット角に対する位相量変化を小さくするという方法が存在する。

今回の実験からある程度多波回折による偏光解析の妥当性を評価できたが、妥当性を完全に検証するには他の偏光解析法との比較が必要である。

予備実験として行ったSi(620)検光子結晶による偏光解析では、 σ 偏光（垂直偏光）成分の強度を検出しただけであり、偏光の決定までは行うことができない。例えばこの方法では円偏光のヘリシティを検出することはできない。今回の実験では移相子で偏光を生成したので、左右円偏光が生成されていることを理論的に推定することができた。ただし、移相子が完全な円偏光を生成している保証はない。したがって、Si(620)検光子結晶を用いた偏光解析法は多波回折による偏光解析法の妥当性を検証するには不十分である。

これまでX線の偏光測定には、ブラッグ角が 45° に近い偏光子を回転させる回転検光子法が広く利用されてきた。この方法では P_1 と P_2 は求まるが、 P_3 は求まらない。偏光を完全に決定するには、回転検光子法に移相子を導入する必要がある。多波回折による偏光解析法

の妥当性を厳密に検証するには、この方法との比較が必要であろう。

4.1.2 より高い円偏光度を持つ光の作成

移相子は直線偏光を円偏光に変換することができるので、偏光解析実験には欠かせない素子である。移相子でより高い円偏光度の光を作り出すには、移相子に高い直線偏光度の光を入射させることが必要である。今回用いたビームは、垂直ウィグラー光を Si (111) の二結晶分光器で単色化し、さらに Si (220) 結晶で屈曲させたものである。したがって、入射ビームは垂直偏光に近いと考えられるが、直線偏光度は必ずしも高いとは言えない。それゆえ、移相子で高い円偏光度の光が生成されたとは考えにくい。直線偏光度の高い光を得るためには、例えば Hart-Rodrigues によって提唱された波長可変型二結晶 X 線偏光子 [29][30] を使用することが考えられる。この偏光子は 45° に近いブラッグ反射を 2 回利用して π 偏光成分を減少させる偏光子であるが、二結晶の間にオフセット機構をつけることで利用可能な波長範囲を広くし、 π 偏光成分をさらに小さくすることができる。この波長可変型二結晶 X 線偏光子を移相子の前に設置することにより、高い円偏光度の光を得ることができ、多波回折を利用した検光子の性能をさらに精密に検証することができる。

4.1.3 1次元スキヤンの有効性の検証

本来、1次元スキヤンではビームの分散の影響がデータに反映されないため、そのデータから得られる偏光解析結果は近似的なものにすぎない。それに対して、2次元スキヤンで得られる反射強度は分散の影響が反映されるため、より精度の高い偏光解析結果を得られる。しかし今回の実験では、1次元スキヤンで得られたデータと2次元スキヤンで得られたデータについて、それぞれから出した線形関係の傾きは標準偏差の範囲内で一致した。この結果は、偏光解析には1次元スキヤンで十分であることを示唆するものである。1次元スキヤンは2次元スキヤンと比較して圧倒的に短時間でデータを得ることができるという優位性があるので、この事実は将来の応用を考えたとき非常に重要である。

ただし、今回の2次元スキヤンでは入射角 θ に関するロッキングカーブを測定する際、その刻み幅の細かさが十分ではなかったために偏差が大きくなってしまった。1次元スキヤンの有効性を確かめるためには、入射角 θ の刻み幅を十分細かくして2次元スキヤンを行い、結果を比較する必要がある。

4.1.4 検光子結晶の最適化の必要性

今回は GaAs 結晶の $(\bar{2}\bar{2}\bar{2})$ 面を主反射面として用いた。入射 X 線のエネルギーは 10keV である。理論的にはどの面を用いても、またはブラッグ反射を起こしうどの入射エネルギーを用いても、Renninger scan によって多波回折を観測できる。しかし検光子の性能を最適化するには、X 線のエネルギー領域毎に異なる結晶や反射面に関して理論と実験の両面から性能比較を行う必要がある。最適化とは、 $1/\Delta\phi$ と $\Delta I(\Delta\phi)/I_{\text{main}}$ の間の線形関係 (式

2.133) について、任意の P に対して傾き $\frac{\Delta I(\Delta\phi)}{I_{\text{main}}} / \frac{1}{\Delta\phi}$ をなるべく大きくすることである。

4.2 多波回折研究としての本研究の意義

本研究の主目的は多波回折を利用して偏光解析を行うことである。しかし、本研究にはそれ以外にも重要な意義がある。例えば、本研究は多波回折現象のさらなる理解につながるだけでなく、X線結晶構造解析の大問題である「位相問題」に対して一つの解決の糸口を与えることができる。

4.2.1 多波回折現象の理解

多波回折を用いて偏光を解析する本研究で実際に行ったことは、多波回折条件から離れた領域における反射強度測定である。この領域では、主反射に対して遠回り反射を摂動とみなす近似を用いることができるため、運動学的回折理論を拡張した理論を用いて簡便でかつ物理的に見通しよく、多波回折現象を理解できる。本研究は、この領域での多波回折の物理的理解に迫るものである。

その一方で、多波回折研究の目指すべきことは、多波回折条件の直近傍の現象の解析であり、その領域の解析を行う手段である動力学的回折理論による多波回折現象の理解である。この動力学的回折理論は物理的見通しを得ることが難しい理論であり、本研究ではこの理論による多波回折の理解には踏み込んでいない。

4.2.2 結晶構造因子の位相情報の回復

結晶構造因子は結晶内の電子密度分布のフーリエ変換に比例する。したがって、結晶構造因子が求まれば、それを逆フーリエ変換することにより電子密度分布が得られる。しかし、X線結晶構造解析実験ではX線の強度を測定するため、得られる情報は結晶構造因子の大きさだけであり、位相情報は得られない。電子密度分布を得るには何らかの方法で失われた位相情報を回復しなければならない。これがX線結晶構造解析における積年の大問題である「位相問題」である。本研究は、この位相問題解決への一つの手がかりを与える。

まず、結晶で回折X線が一つだけ生じる場合を考える。このとき、複素数である結晶構造因子の位相部分は観測されない。これは散乱振幅の式 2.68

$$\mathbf{D} = \frac{N r_e F_H e^{-ik_0 r}}{r} \hat{\mathbf{f}} \times (\hat{\mathbf{f}} \times \mathbf{D}_0) \quad (4.2)$$

と、散乱強度の式

$$I \propto \langle \mathbf{D} \cdot \mathbf{D}^* \rangle \propto |F_H|^2 |\mathbf{D}_0|^2 \quad (4.3)$$

からわかる。測定できる物理量は散乱強度であり、散乱強度には構造因子の絶対値 $|F_H|$ は反映されるが位相部分 $\text{arg}(F_H)$ は反映されないからである。

一方、多波回折の場合、反射強度は式 2.133 で与えられ、

$$\frac{\Delta I(\Delta\phi)}{I_{\text{main}}} = \frac{1}{\Delta\phi \cos\theta \lambda \sigma_0 \cdot L} a \quad (4.4)$$

$$\cdot \frac{\{[A_{\sigma\sigma} \cos \delta_{\text{HL}} (1 + P_1) + A_{\pi\sigma} \cos \delta_{\text{HL}} P_2 - A_{\pi\sigma} \sin \delta_{\text{HL}} P_3] + \cos 2\theta [A_{\pi\pi} \cos \delta_{\text{HL}} (1 - P_1) + A_{\sigma\pi} \cos \delta_{\text{HL}} P_2 + A_{\sigma\pi} \sin \delta_{\text{HL}} P_3]\}}{\frac{1 + P_1}{2} + \frac{1 - P_1}{2} \cos^2 2\theta}$$

となる。この式からわかるように、反射強度は結晶構造因子の位相に関する量

$$\delta_{\text{HL}} = \text{arg} \left(\frac{F_L F_{\text{H-L}}}{F_H} \right) \quad (4.5)$$

に依存する。本研究では、構造が既知の GaAs 結晶を用いたため δ_{HL} を計算で求めることができ、未知数であるポアンカレ偏光ベクトルを実験結果から得ることができた。逆に、構造が未知の結晶に既知の偏光の X 線を入射させて Renninger scan を行い

$$\frac{\Delta I(\Delta\phi)}{I_{\text{main}}}$$

を測定すれば、 δ_{HL} を求めることができ、構造因子の位相部分を決定することができる。このように本研究は位相問題解決にも役立つ可能性を秘めている。

第5章 まとめ

本章では、本研究で得られた成果をまとめる。

X線の偏光状態の決定を多波回折によって行う手法の有効性を検証するために、PFのビームライン BL-14B で実験をした。本実験では、多波回折条件をみたす位置の近傍での Renninger scan を異なる偏光の X 線に対して行った。実験で用いた偏光は、左右円偏光、 σ 偏光、 π 偏光の4種類であった。

この実験で、多波回折条件からわずかに離れた領域では反射強度が偏光に依存することを確認した。反射強度の偏光依存性を表す式 2.133

$$\frac{\Delta I(\Delta\phi)}{I_{\text{main}}} = \frac{1}{\Delta\phi \cos\theta \lambda \sigma_0 \cdot L} \cdot \frac{[A_{\sigma\sigma} \cos\delta_{\text{HL}}(1+P_1) + A_{\pi\sigma} \cos\delta_{\text{HL}}P_2 - A_{\pi\sigma} \sin\delta_{\text{HL}}P_3] + \cos 2\theta [A_{\pi\pi} \cos\delta_{\text{HL}}(1-P_1) + A_{\sigma\pi} \cos\delta_{\text{HL}}P_2 + A_{\sigma\pi} \sin\delta_{\text{HL}}P_3]}{\frac{1+P_1}{2} + \frac{1-P_1}{2} \cos^2 2\theta}$$

を適用して実験データからポアンカレベクトルを計算した結果、左右円偏光及び σ 偏光に対しては理論値に近い結果が得られた。ただし、 π 偏光については上記の線形関係からの偏差が大きく、本手法の有効性を確認するまでには至らなかった。

さらに、短時間での偏光解析が可能であること示唆する結果を得た。入射角 θ を固定して反射強度を測定する1次元スキャンでは、ビームの分散の影響がデータに反映されないために、そのデータから得られる偏光解析結果は近似的なものにすぎないと考えられていた。それに対して、入射角を変えることで積分反射強度を測定する2次元スキャンでは、ビームの分散の影響が反映されるために、より精度の高い偏光解析結果が得られると考えられていた。しかし今回の実験では、1次元スキャンで得られたデータが2次元スキャンで得られたデータと標準偏差の範囲内で一致した。ここでの標準偏差とは、上記の線形関係の傾きからの標準偏差である。1次元データにおいては反射強度を測定する際に、方位角 ϕ のみを変化させるので短時間で測定することができる。

また、遠回り反射を主反射に対する摂動とみなす、多波回折に拡張された運動学的回折理論によって、多波回折条件からわずかに離れた領域での多波回折現象を物理的に見通しよく理解することができるようになった。遠回り反射を主反射に対する摂動とみなす描像の妥当性は、多波回折条件からわずかに離れた領域における反射強度の測定結果がこの理論から予測された

$$\frac{\Delta I(\Delta\phi)}{I_{\text{main}}} \propto \frac{1}{\Delta\phi}$$

という線形関係を満たすことから、確認された。

付録 A 2.1 節で使用したグリーン関数の方法について

グリーン関数の方程式

$$\nabla^2 G = -\delta(\mathbf{r}) \quad (\text{A.1})$$

の解 (特解) は,

$$G = \frac{1}{4\pi|\mathbf{r}|} \quad (\text{A.2})$$

である。

次にグリーン関数の方程式

$$(\nabla^2 + k_0^2)G = -\delta(\mathbf{r}) \quad (\text{A.3})$$

の特解を考える。

$G(\mathbf{r}) = \frac{f(\mathbf{r})}{4\pi|\mathbf{r}|}$ とおくと,

$$\frac{1}{4\pi|\mathbf{r}|} \nabla^2 f + 2(\nabla f) \cdot \left(\nabla \frac{1}{4\pi|\mathbf{r}|} \right) + f \nabla^2 \frac{1}{4\pi|\mathbf{r}|} + k_0^2 \frac{f(\mathbf{r})}{4\pi|\mathbf{r}|} = -\delta(\mathbf{r}) \quad (\text{A.4})$$

となる。 $\mathbf{n} = \mathbf{r}/|\mathbf{r}|$ とすると

$$\nabla^2 \frac{1}{4\pi|\mathbf{r}|} = -\delta(\mathbf{r}), \quad \nabla \frac{1}{4\pi|\mathbf{r}|} = -\frac{1}{4\pi r^2} \mathbf{n} \quad (\text{A.5})$$

が成り立つことから,

$$\frac{1}{4\pi|\mathbf{r}|} \nabla^2 f - 2\mathbf{n} \cdot (\nabla f) \frac{1}{4\pi r^2} - f \delta(\mathbf{r}) + k_0^2 \frac{f(\mathbf{r})}{4\pi|\mathbf{r}|} = -\delta(\mathbf{r}) \quad (\text{A.6})$$

となり、この両辺に $4\pi|\mathbf{r}|$ をかけると,

$$\nabla^2 f - 2\mathbf{r} \cdot (\nabla f) - 4\pi|\mathbf{r}|f \delta(\mathbf{r}) + k_0^2 f(\mathbf{r}) = -4\pi|\mathbf{r}|\delta(\mathbf{r}) \quad (\text{A.7})$$

となる。 $|\mathbf{r}| \neq 0$ のところでは,

$$\nabla^2 f - 2\mathbf{r} \cdot (\nabla f) + k_0^2 f(\mathbf{r}) = 0 \quad (\text{A.8})$$

$f = Ce^{\pm ik_0|\mathbf{r}|}$ は、この方程式をみたく。

$$\left(\nabla^2 f = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial f}{\partial r} \right) = \frac{\partial^2 f}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial f}{\partial r} = -k_0^2 f + \frac{2}{r} \frac{\partial f}{\partial r}, \quad \nabla f = \mathbf{n} \frac{\partial f}{\partial r} \right)$$

$|\mathbf{r}| = 0$ で方程式が成り立つためには、 $f(0) = 1$ である必要がある。すなわち、 $C = 1$ したがって、

$$G(\mathbf{r}) = \frac{e^{\pm ik_0|\mathbf{r}|}}{4\pi|\mathbf{r}|} \quad (\text{A.9})$$

となる。それぞれ、先進グリーン関数、遅延グリーン関数を表す。

次に $\frac{e^{-ik_0|r|}}{4\pi|r|}$ をフーリエ展開することを考える。

$G = \frac{e^{-ik_0|r|}}{4\pi|r|}$ は、先ほど見たように

$$(\nabla^2 + k_0^2)G = -\delta(\mathbf{r}) \quad (\text{A. 10})$$

の特解である。

両辺をフーリエ変換すると、

$$(k_0^2 - k^2)\hat{G} = -1 \quad (\text{A. 11})$$

である。したがって、

$$\hat{G} = \frac{1}{k^2 - k_0^2} \quad (\text{A. 12})$$

となる。以上より、

フーリエ変換

$$\frac{1}{k^2 - k_0^2} = \int_{\Omega} d\mathbf{r} \frac{e^{-ik_0|r|}}{4\pi|r|} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \quad (\text{A. 13})$$

逆フーリエ変換

$$\frac{e^{-ik_0|r|}}{4\pi|r|} = \frac{1}{(2\pi)^3} \int_{\Omega_{\mathbf{k}}} d\mathbf{k} \frac{e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}}{k^2 - k_0^2} \quad (\text{A. 14})$$

の関係が成立することが分かる。

なお、途中の

$$\int_V d\mathbf{r} e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \quad (\text{A. 15})$$

の積分について、

$$\left(\frac{2\pi}{k}\right)^3 \ll V \quad (\text{A. 16})$$

のときに成立する次の近似を使用した。

(i) \mathbf{k} が離散のとき

$$\int_V d\mathbf{r} e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \simeq V\delta_{\mathbf{0},\mathbf{k}} \quad (\text{A. 17})$$

(ii) \mathbf{k} が連続のとき

$$\int_V d\mathbf{r} e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \simeq (2\pi)^3 \delta(\mathbf{k}) \quad (\text{A. 18})$$

付録 B 幾何行列{ \mathcal{A} }と方向パラメータ $B(\phi)$ の導出

ここでは、幾何行列{ \mathcal{A} }と方向パラメータ $B(\phi)$ の導出を行う。以下の議論では、波数ベクトルと逆格子ベクトルは $2\pi/a$ を乗ずることで規格化して取り扱う。

幾何行列{ \mathcal{A} }の導出

出発点となるのは 2.1 節で求めた式 2.80 である。ただし、エwald球近傍に存在する逆格子点 L としては一点を考えたために Σ を外した形の式となっている。遠回り反射が 1 種類であるという近似に対応する。

$$\mathbf{D}_H = N r_e F_H \frac{e^{-ik_0 r}}{r} \mathbf{n} \times \left[\mathbf{n} \times \left(\mathbf{D}_0 - \Gamma \left| \frac{F_L F_{H-L}}{F_H} \right| e^{i\delta_{HL}} \frac{\mathbf{k}_L \times (\mathbf{k}_L \times \mathbf{D}_0)}{k_0^2 - k_L^2} \right) \right] \quad (\text{B.1})$$

この式の第 2 項は、

$$\begin{aligned} & -\mathbf{n} \times [\mathbf{n} \times \{\mathbf{k}_L \times (\mathbf{k}_L \times \mathbf{D}_0)\}] \\ & = \mathbf{n} \{k_L^2 (\mathbf{n} \cdot \mathbf{D}_0) - (\mathbf{n} \cdot \mathbf{k}_L)(\mathbf{k}_L \cdot \mathbf{D}_0)\} - k_L^2 \mathbf{D}_0 + \mathbf{k}_L (\mathbf{k}_L \cdot \mathbf{D}_0) \end{aligned} \quad (\text{B.2})$$

と展開される。次に、 \mathbf{k}_L を正規直交系を用いて

$$\mathbf{k}_L = (\mathbf{k}_L \cdot \boldsymbol{\sigma})\boldsymbol{\sigma} + (\mathbf{k}_L \cdot \boldsymbol{\pi})\boldsymbol{\pi} + (\mathbf{k}_L \cdot \mathbf{n})\mathbf{n} \quad (\text{B.3})$$

と展開する。

一方、

$$\boldsymbol{\pi} = \frac{-\boldsymbol{\pi}_0 - \sin 2\theta \mathbf{n}}{\cos 2\theta} \quad (\text{B.4})$$

$$\boldsymbol{\pi}_0 = -\cos 2\theta \boldsymbol{\pi} - \sin 2\theta \mathbf{n} = (\boldsymbol{\pi} \cdot \boldsymbol{\pi}_0)\boldsymbol{\pi} - (\mathbf{n} \cdot \boldsymbol{\pi}_0)\mathbf{n} \quad (\text{B.5})$$

$$\boldsymbol{\sigma} = -\boldsymbol{\sigma}_0 \quad (\text{B.6})$$

$$\mathbf{k}_L \cdot \boldsymbol{\sigma}_0 = (\mathbf{k}_0 + \mathbf{L}) \cdot \boldsymbol{\sigma}_0 = \mathbf{L} \cdot \boldsymbol{\sigma}_0 \quad (\text{B.7})$$

という関係式が成り立つので、

$$\begin{aligned} \mathbf{k}_L \cdot \mathbf{D}_0 &= \{(\mathbf{k}_L \cdot \boldsymbol{\sigma})\boldsymbol{\sigma} + (\mathbf{k}_L \cdot \boldsymbol{\pi})\boldsymbol{\pi} + (\mathbf{k}_L \cdot \mathbf{n})\mathbf{n}\} \cdot (D_{0\sigma}\boldsymbol{\sigma}_0 + D_{0\pi}\boldsymbol{\pi}_0) \\ &= \{-(\mathbf{k}_L \cdot \boldsymbol{\sigma}_0)\boldsymbol{\sigma} + (\mathbf{k}_L \cdot \boldsymbol{\pi})\boldsymbol{\pi} + (\mathbf{k}_L \cdot \mathbf{n})\mathbf{n}\} \cdot \{-D_{0\sigma}\boldsymbol{\sigma} - D_{0\pi}(\cos 2\theta \boldsymbol{\pi} + \sin 2\theta \mathbf{n})\} \\ &= D_{0\sigma}(\mathbf{L} \cdot \boldsymbol{\sigma}_0) - D_{0\pi}(\mathbf{k}_L \cdot \boldsymbol{\pi}) \cos 2\theta - D_{0\pi}(\mathbf{k}_L \cdot \mathbf{n}) \sin 2\theta \\ &= D_{0\sigma}(\mathbf{L} \cdot \boldsymbol{\sigma}_0) + D_{0\pi}(\mathbf{k}_L \cdot \boldsymbol{\pi})(\boldsymbol{\pi} \cdot \boldsymbol{\pi}_0) - D_{0\pi}(\mathbf{k}_L \cdot \mathbf{n})(\boldsymbol{\pi}_0 \cdot \mathbf{n}) \\ &= D_{0\sigma}(\mathbf{L} \cdot \boldsymbol{\sigma}_0) + D_{0\pi}(\mathbf{k}_L \cdot \boldsymbol{\pi}_0) \end{aligned} \quad (\text{B.8})$$

$$\mathbf{k}_L (\mathbf{k}_L \cdot \mathbf{D}_0) = \{-(\mathbf{L} \cdot \boldsymbol{\sigma}_0)\boldsymbol{\sigma} + (\mathbf{k}_L \cdot \boldsymbol{\pi})\boldsymbol{\pi} + (\mathbf{k}_L \cdot \mathbf{n})\mathbf{n}\} \{D_{0\sigma}(\mathbf{L} \cdot \boldsymbol{\sigma}_0) + D_{0\pi}(\mathbf{k}_L \cdot \boldsymbol{\pi}_0)\} \quad (\text{B.9})$$

$$\begin{aligned} k_L^2 \mathbf{D}_0 &= (D_{0\sigma}\boldsymbol{\sigma}_0 + D_{0\pi}\boldsymbol{\pi}_0) \\ &= k_L^2 \{-D_{0\sigma}\boldsymbol{\sigma} - D_{0\pi}(\cos 2\theta \boldsymbol{\pi} + \sin 2\theta \mathbf{n})\} \\ &= k_L^2 \{-D_{0\sigma}\boldsymbol{\sigma} + D_{0\pi}((\boldsymbol{\pi} \cdot \boldsymbol{\pi}_0)\boldsymbol{\pi} - (\boldsymbol{\pi}_0 \cdot \mathbf{n})\mathbf{n})\} \end{aligned} \quad (\text{B.10})$$

$$\mathbf{n} \cdot \mathbf{D}_0 = \mathbf{n} \cdot (D_{0\sigma} \boldsymbol{\sigma}_0 + D_{0\pi} \boldsymbol{\pi}_0) = D_{0\pi} (\mathbf{n} \cdot \boldsymbol{\pi}_0) \quad (\text{B.11})$$

となる。

\mathbf{n} が消去されるのは自明であり、以上の結果から、

$$\begin{aligned} & -\mathbf{n} \times [\mathbf{n} \times \{\mathbf{k}_L \times (\mathbf{k}_L \times \mathbf{D}_0)\}] \\ &= k_L^2 (-D_{0\pi} (\boldsymbol{\pi}_0 \cdot \boldsymbol{\pi}) \boldsymbol{\pi} + D_{0\sigma} \boldsymbol{\sigma}) - \{(\mathbf{k}_L \cdot \boldsymbol{\pi}_0) D_{0\pi} + (\mathbf{L} \cdot \boldsymbol{\sigma}_0) D_{0\sigma}\} \{\boldsymbol{\sigma} (\mathbf{L} \cdot \boldsymbol{\sigma}_0) - (\mathbf{k}_L \cdot \boldsymbol{\pi}) \boldsymbol{\pi}\} \\ &= (\boldsymbol{\sigma} \quad \boldsymbol{\pi}) \begin{pmatrix} k_L^2 - (\mathbf{L} \cdot \boldsymbol{\sigma}_0)^2 & -(\mathbf{k}_L \cdot \boldsymbol{\pi}_0) (\mathbf{L} \cdot \boldsymbol{\sigma}_0) \\ (\mathbf{k}_L \cdot \boldsymbol{\pi}) (\mathbf{L} \cdot \boldsymbol{\sigma}_0) & -k_L^2 (\boldsymbol{\pi} \cdot \boldsymbol{\pi}_0) + (\mathbf{k}_L \cdot \boldsymbol{\pi}) (\mathbf{k}_L \cdot \boldsymbol{\pi}_0) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} D_{0\sigma} \\ D_{0\pi} \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (\text{B.12})$$

という関係式が求まる。これから幾何行列 $\{\mathcal{A}\}$ が導かれる。

$$\begin{aligned} & -\mathbf{n} \times [\mathbf{n} \times \{\mathbf{k}_L \times (\mathbf{k}_L \times \mathbf{D}_0)\}] \\ &= (\boldsymbol{\sigma} \quad \boldsymbol{\pi}) \begin{pmatrix} k_L^2 - (\mathbf{L} \cdot \boldsymbol{\sigma}_0)^2 & -(\mathbf{k}_L \cdot \boldsymbol{\pi}_0) (\mathbf{L} \cdot \boldsymbol{\sigma}_0) \\ (\mathbf{k}_L \cdot \boldsymbol{\pi}) (\mathbf{L} \cdot \boldsymbol{\sigma}_0) & -k_L^2 (\boldsymbol{\pi} \cdot \boldsymbol{\pi}_0) + (\mathbf{k}_L \cdot \boldsymbol{\pi}) (\mathbf{k}_L \cdot \boldsymbol{\pi}_0) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} D_{0\sigma} \\ D_{0\pi} \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (\text{B.13})$$

方向パラメータ B の導出

方向パラメータ B は

$$B = \frac{k_0^2}{k_0^2 - k_L^2} \quad (\text{B.14})$$

と定義される。ここで、 $\Delta\phi \equiv \phi - \phi_L \ll 1$ とする。この定義式に

$$\begin{aligned} k_L^2 &= (\mathbf{k}_0 + \mathbf{L})^2 \\ &= k_0^2 + L^2 + 2\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{L} \\ &= k_0^2 - 2|\mathbf{k}_{0\perp}| \Delta\phi \boldsymbol{\sigma}_0 \cdot \mathbf{L} \end{aligned} \quad (\text{B.15})$$

を代入すると、

$$B = \frac{k_0^2}{k_0^2 - k_L^2} = \frac{k_0^2}{2|\mathbf{k}_{0\perp}| \Delta\phi \boldsymbol{\sigma}_0 \cdot \mathbf{L}} \quad (\text{B.16})$$

という式が得られる。ここで、主反射のブラッグ角を θ とおくと、

$$|\mathbf{k}_{0\perp}| = k_0 \cos \theta \quad (\text{B.17})$$

という関係が成り立つから、

$$B(\phi) = \frac{k_0}{2 \cos \theta \Delta\phi \boldsymbol{\sigma}_0 \cdot \mathbf{L}} = \frac{a}{2 \cos \theta \Delta\phi \lambda \boldsymbol{\sigma}_0 \cdot \mathbf{L}} \quad (\text{B.18})$$

$$B(\phi)^{-1} = \frac{2 \cos \theta \Delta\phi \boldsymbol{\sigma}_0 \cdot \mathbf{L}}{k_0} = 2 \cos \theta \Delta\phi \frac{\lambda \boldsymbol{\sigma}_0 \cdot \mathbf{L}}{a} \quad (\text{B.19})$$

という結果が得られる。 $\boldsymbol{\sigma}_0$ は実際には方位角 ϕ に依存する。しかし、 $\phi = \phi_L$ 近くではほぼ一定なので、 $\phi = \phi_L$ のときの値で代用することができる。

なお、式の展開にあたっては、

$$\begin{aligned}
\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{L} &= \mathbf{k}_{0\perp H} \cdot \mathbf{L}_{\perp H} + \mathbf{k}_{0\parallel H} \cdot \mathbf{L}_{\parallel H} \\
&= -\cos(\beta - \Delta\phi) |\mathbf{k}_{0\perp}| |\mathbf{L}_{\perp}| + \frac{-\mathbf{H} \cdot \mathbf{H} \cdot \mathbf{L}}{2 \cdot H^2} \mathbf{H} \\
&= -\{\cos \beta \cos \Delta\phi + \sin \beta \sin \Delta\phi\} |\mathbf{k}_{0\perp}| |\mathbf{L}_{\perp}| - \frac{\mathbf{H} \cdot \mathbf{L}}{2} \\
&\approx -\{\cos \beta + \Delta\phi \sin(\beta - \Delta\phi)\} |\mathbf{k}_{0\perp}| |\mathbf{L}_{\perp}| - \frac{\mathbf{H} \cdot \mathbf{L}}{2} \\
&= -\left\{ \frac{1}{2} \frac{L^2 - \mathbf{L} \cdot \mathbf{H}}{|\mathbf{L}_{\perp}| |\mathbf{k}_0|} + \Delta\phi \boldsymbol{\sigma}_0 \cdot \frac{\mathbf{L}_{\perp}}{|\mathbf{L}_{\perp}|} \right\} |\mathbf{k}_{0\perp}| |\mathbf{L}_{\perp}| - \frac{\mathbf{H} \cdot \mathbf{L}}{2} \\
&= -\frac{1}{2} L^2 - |\mathbf{k}_{0\perp}| \Delta\phi \boldsymbol{\sigma}_0 \cdot \mathbf{L}_{\perp} = -\frac{1}{2} L^2 - |\mathbf{k}_{0\perp}| \Delta\phi \boldsymbol{\sigma}_0 \cdot \mathbf{L} \tag{B.20}
\end{aligned}$$

という関係式を利用した。

また、多波回折の条件式

$$|\mathbf{k}_{0\perp}| \cos \beta = \frac{1}{2} \frac{L^2 - \mathbf{L} \cdot \mathbf{H}}{|\mathbf{L}_{\perp}|} \tag{B.21}$$

を使用した。

参考文献

- [1] 石川哲也: 応用物理, **74** (2005) 429.
- [2] 雨宮慶幸: 真空, **49** (2006) 673.
- [3] 新竹積: 放射光, **18** (2005) 35.
- [4] 諏訪田剛、飯田厚夫: 「放射光将来計画検討報告 - ERL 光源と利用研究 -」、高エネルギー加速器研究機構 (2003).
- [5] K. Hirano: Trans. MRSJ, **28** (2003) 43.
- [6] K.-J. Kim, Y. Shvyd'ko and S. Reiche: Phys. Rev. Lett., **100** (2008) 244802.
- [7] J. P. Sutter, E. E. Alp, M. Y. Hu, P. L. Lee, H. Sinn, W. Sturhahn and T. S. Toellner: Phys. Rev. B, **63** (2001) 094111.
- [8] V. E. Dmitrienko: Acta Cryst., **A39** (1983) 29.
- [9] 國分淳、石田興太郎: 日本結晶学会誌, **44** (2002) 161.
- [10] M. Blume and D. Gibbs: Phys. Rev. B, **37** (1988) 1779.
- [11] D. Gibbs, G. Grubel, D. R. Harshman, E. D. Isaacs, D. B. McWhan, D. Mills and C. Vettier: Phys. Rev. B, **43** (1991) 5663.
- [12] 伊藤正久: 日本結晶学会誌, **44** (2002) 365.
- [13] 菊田惺志: 「X線回折・散乱技術 上」、東京大学出版会、東京 (1992) .
- [14] 波岡武、山下広順: 「X線結像光学」、培風館、東京 (1999).
- [15] Q. Shen and K. D. Finkelstein: Phys. Rev. B, **45** (1992) 5075.
- [16] K. Hirano, K. Izumi, T. Ishikawa, S. Annaka and S. Kikuta: Jpn. J. Appl. Phys., **30** (1991) L407.
- [17] 平野馨一: 「X線移相子の開発と応用」、東京大学博士論文 (1993).
- [18] 平野馨一: 放射光, **11** (1998) 238.
- [19] Q. Shen: Acta Cryst., **A42** (1986) 525.
- [20] H. Cole, F. W. Chambers and H. M. Dunn: Acta Cryst., **15** (1962) 138.
- [21] R. Colella: Acta Cryst., **A30** (1974) 413.
- [22] B. W. Batterman and H. Cole: Rev. Mod. Phys., **36** (1964) 681.
- [23] 大橋治彦、平野馨一編: 「放射光ビームライン光学技術入門」、日本放射光学会(2008)
- [24] T. Yamakawa, S. Sato, H. Kitamura, E. Takasaki, T. Shioya, T. Mitsuhashi, M. Kihara and C. Lesmond: Nucl. Instr. Methods Phys. Res. A, **246** (1986) 32.
- [25] M. Ando, Y. Satow, H. Kawata, T. Ishikawa, P. Spieker and S. Suzuki: Nucl. Instr. Methods Phys. Res. A, **246** (1986) 144.
- [26] 張小威、杉山弘、依田芳卓: 放射光, **14** (2001) 292.

- [27] “International Tables for X-Ray Crystallography” Vol. I~IV, Kynoch Press (I 1952, II 1959, III 1962, IV 1974).
- [28] S. Sasaki: KEK Report 88-14 (1989).
- [29] M. Hart, and A. R. D. Rodrigues: *Philos. Mag.*, **B40** (1979) 149.
- [30] M. Hart, and D. P. Siddons, Y. Amemiya and V. Stojanoff: *Rev. Sci. Instrum.*, **62** (1991) 2540.

謝辞

本論文の研究を進めるにあたり、多くの方にお世話になりました。

雨宮慶幸教授には、研究についての様々なアドバイスを頂きました。また、研究者としての姿勢を教えてくださいました。

高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所の平野馨一准教授には、実験方法や研究の方向性について全面的にご指導を頂きました。実験については現場で直接ご指導頂き、放射光実験に限らない、実験を進める上でのコツを学ぶことができました。さらに本論文を執筆するに当たり、多くのアドバイスを頂きました。

秘書の川尻幸代さんには、出張手続きなど様々な事務作業をして頂きました。

篠原佑也助教には、研究についての様々なアドバイスを頂きました。また、研究に必要な手続きをして頂きました。

研究室の方々には、普段の研究生活で色々と助けて頂きました。

多くの方にお世話になったことで本論文の研究を進めることができました。まことにありがとうございました。