

X線偏光コントラストイメージング

佐藤 公法¹, 上エ地 義徳¹, 沖津 康平²
長谷川 祐司¹, 松下 正³, 雨宮 慶幸^{1,4}

¹東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻*, ²東京大学工学部総合試験所,

³高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所,

⁴東京大学大学院新領域創成科学研究科物質系専攻

X-ray Polarization-contrast Imaging

Kiminori SATO¹, Yoshinori UEJI¹, Kohei OKITSU² and Yoshiyuki AMEMIYA³

¹Department of Applied Physics, University of Tokyo

²Engineering Research Institute, University of Tokyo

³Institute of Materials Structure Science, High Energy Accelerator Research Organization (KEK)

⁴Department of Advanced Materials Science, University of Tokyo

X-ray polarization-contrast images due to X-ray natural linear dichroism (XNLD) and X-ray magnetic circular dichroism (XMCD) in hard X-ray region have been successfully recorded for the first time. The polarization imaging system consists of an X-ray polarizer, double X-ray phase retardes, and a high-spatial resolution X-ray CCD detector.

An hcp cobalt single crystal foil about 12 μm thick, was used for XNLD imaging. The experiment was performed at X-ray energies of 23 eV and 29 eV above the cobalt K-edge (7709 eV), where the maximum linear dichroism ($\sim 3\%$) were observed with their signs reversed by using the X-ray polarimeter. The contrasts in the images at the two X-ray energies were reversed due to the XNLD in the sample.

An hcp cobalt poly-crystal foil about 4 μm thick, was used for XMCD imaging. The X-ray polarization-contrast due to X-ray magnetic circular dichroism was observed at a photon energy of 10 eV above the cobalt K-absorption edge (7709 eV). The observed contrasts in the images were reversed by inversion of a magnetic field. Furthermore, the contrasts were reversed again at a photon energy of 32 eV above the cobalt K-absorption edge. These values of the contrast in the images due to the XNLD ($\sim 3\%$) and the XMCD ($\sim 0.3\%$) were in good agreement with those in the XNLD and XMCD spectra.

1. はじめに

シンクロトロン放射の偏光特性を活用した「新しいX線計測技術の開発」という立場に立って、我々のグループでは、X線エリプソメータ(偏光解析器)の開発を行っている¹⁾。エリプソメトリー(偏光解析法)は、偏光状態の分かった完全偏光の光を試料に入射し、反射・透過の際の光の偏光状態の変化を測定し、試料の光学定数を求める測定法である。開発したX線エリプソメータを用いると、7~10 keVのX線領域で光学活性(またはファラデー効果)、直線・円二色性、複屈折のスペクトルを高精度で測定することができる^{2,3)}。我々は、この計測技術をイメージング技術と結びつけて、X線領域の偏光現象に起因す

るコントラスト像を測定する「X線偏光顕微鏡」の開発を現在行っている^{4,5)}。現時点では、空間分解能などの点でまだ開発途上であるが、本特集「イメージング」で執筆の機会を与えられたので、装置の概要、また、それを用いて測定した直線二色性および磁気円二色性に基づく偏光依存の吸収コントラストイメージの測定について紹介する。

可視光領域において、物質と偏光の相互作用を利用したイメージング手法は、多結晶物質の結晶粒の観察、磁性体の磁区構造の観察などの手段として広く普及している。最近、軟X線領域では、偏光軟X線を用いた光電子顕微鏡(PEEM)による「偏光顕微法」が磁性マイクロ構造の研究において世界的に注目され、本特集でも取り上げられてい

* 東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻 〒113-8656 東京都文京区本郷7-3-1
TEL: 03-5841-6825 FAX: 03-5841-6949 E-mail: sato@kohsai.t.u-tokyo.ac.jp amemiya@kohsai.t.u-tokyo.ac.jp

る。これに対して、硬 X 線領域での「偏光顕微法」の試みは未だ行われていない。我々が知る限り、結晶の不完全性を反映した偏光コントラスト像の測定があるのみである^{6,7)}。軟 X 線領域での「偏光顕微法」が硬 X 線領域に対して先行している主な理由は、磁性を担う遷移金属の 3d 軌道や希土類元素の 4f 軌道への電子遷移を直接観察できるので大きな磁気二色性が得られ、磁性研究に適したエネルギー領域であるからであろう。しかし、歴史的には放射光を用いた磁気円二色性の測定が初めて行われたのは硬 X 線領域であったという事実⁸⁾を取っても、硬 X 線も十分に磁性研究のプロブとしての可能性を有している⁹⁾。軟 X 線と同様に元素選択的な測定が可能であるばかりでなく、高い透過能力を利用して表面でなくバルクの元素の磁性についての情報を得ることができる。将来、トモグラフィーの手法を取り入れれば、3次元空間での磁性構造の研究を行うことも可能になる。また、我々の方法は、光学素子を用いて入射 X 線の偏光状態を制御するので、左右の円偏光のスイッチングも縦横の直線偏光のスイッチングも自由に行うことができ、円二色性イメージと直線二色性イメージの同時・分離観察も行うことができる。磁性研究以外でも、硬 X 線領域での「偏光顕微法」は、物質の深いエネルギー準位での光学異方性や光学活性のイメージングを可能にするので、新たな応用分野が開ける可能性を期待している。

本稿では、始めに、X 線偏光コントラスト像を記録する高分解能 CCD 型 X 線検出器について、次に、X 線偏光をスイッチングするための光学系について述べる。最後にそれらを組み合わせて行った、コバルト単結晶の X 線自然直線二色性 (XNLD) コントラスト像とコバルト多結晶の X 線磁気円二色性 (XMCD) コントラスト像の測定を紹介する。

2. 高分解能 CCD 型 X 線検出器

我々が開発した CCD 型 X 線検出器は、蛍光体、拡大光学レンズ、光学 CCD カメラ、カメラコントローラ、制御コンピュータから構成されている (Fig. 1)。X 線像は、蛍光体により可視像に変換され、拡大光学レンズで拡大されて CCD 撮像素子に結像される。この CCD 型 X 線検出器の空間分解能を決める要因は蛍光体である。すなわち、蛍光体で変換された可視光像のボケが空間分解能を決定する。高い空間分解能を得るには蛍光体を薄くする必要があるが、それと同時に発光効率、発光の場所的不均一性も考慮して蛍光体を最適化しなければならない。蛍光体の材質、厚さ、塗布方法、基板の種類を変えて性能比較を行った (Table 1)。現段階では、ベリリウム基板に厚さ 6 μm で沈殿塗布した $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S}:\text{Tb}$ (P-43) を用いている。拡大光学レンズの拡大率は、 $\times 2.5$, $\times 5$, $\times 10$, $\times 20$, で変化させることができる。光学 CCD カメラ (浜ホト製 C4880-40) の撮像素子は、冷却型インターライン読み出し CCD (SONY 製 ICX-061) である。画素サイズは $6.7 \mu\text{m} \times 6.7 \mu\text{m}$, 画素数は $1280 \text{ pixel} \times 1024 \text{ pixel}$ で、 $10.0 \text{ mm} \times 8.7 \text{ mm}$ の有効面積を持つ。CCD 撮像素子は、暗電流を低減して長時間露光できるように、ペルチェ素子で -50°C に冷却して使用しているので、暗電流は $0.02 \text{ electrons/sec/pixel}$ と極めて低い。また、CCD 撮像素子は

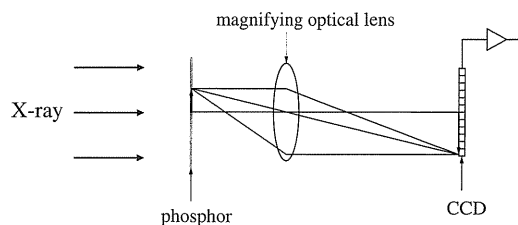


Figure 1. Schematic view of the X-ray CCD detector.

Table 1. Evaluation of phosphor screens. D, FWHM, $\eta_{\gamma/e}$, and $\delta I/I$ indicate the thickness, the spatial resolution, the conversion gain, and non-uniformity of response, respectively

material	D [μm]	substrate	deposition	FWHM [μm]	$\eta_{\gamma/e}$ [e-h/xph]	$\delta I/I$ [%]	
$\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S}:\text{Tb}$ (P-43)	12.6	aluminized	flow (horizontal)	36.5 ± 0.5	1.71	14.7	
	4.9			29.6 ± 0.7	1.05	41.1	
	12~22	Mylar	flow (incline)	21.1 ± 0.4	1.46	40.0	
	4~5			12.1 ± 0.6	0.76	21.8	
	glass (3 mm)	10	sedimentation		7.9 ± 0.7	0.60	10.9
		5~7			5.9 ± 0.4	0.36	14.3
6		5.1 ± 0.5			0.37	17.1	
6	beryllium		5.3 ± 0.4	0.34	13.6		
CsI:Tl	6	glass (1 mm)	evaporation	9.8 ± 0.9	0.10	17.7	
$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$ (YAG)	25	glass (3 mm)	glue	3.6 ± 0.5	0.05	12.2	

Table 2. Components and performance characteristics of the X-ray CCD detector

Components
Phosphor
material: $Gd_2O_3:S:Tb$ (P-43)
thickness: $6\ \mu m$
substrate: beryllium
deposition: sedimentation
spatial resolution: $5.3 \pm 0.4\ \mu m^a$
conversion gain: $0.34\ e^-h/xph^b$
Magnifying optical lens (CF IC EPI Plan, Nikon)
numerical aperture (NA)
$\times 2.5: 0.075\ \times 5: 0.13\ \times 10: 0.3\ \times 20: 0.46$
CCD camera (C4880-40, HAMAMASTU)
CCD type: Interline CCD, ICX-061, SONY
number of pixel: 1280×1024
size of pixel: $6.7\ \mu m \times 6.7\ \mu m$
full-well capacity: 16,000 electrons
active area: $10.0\ mm \times 8.7\ mm$
operational temperature: $-40 \sim -50^\circ C$
readout time [frame/sec]: 0.22 or 5.36
quantum efficiency: 42% ^c
readout noise: 5 electron r.m.s.
dark charge: 0.02 electron/sec/pixel ^d
dynamic range: 3200
ADC resolution: 16 bit
gain [electron/ADC]: 0.06 or 0.13 or 0.38

^a: FWHM of LSF at 7.709 keV.

^b: for 8 keV X-rays with magnifying optical lens ($\times 2.5$).

^c: at 540 nm.

^d: at $-50^\circ C$.

250 nm から1000 nm の波長領域で分光感度特性を持ち、 $Gd_2O_3:S:Tb$ (P-43) (主波長: 545 nm) に対する量子効率は約42%である。CCD 撮像素子からのアナログ出力は増幅された後、16 bit デジタル画像に変換され、0.22 frame/sec の速度で計算機に取り込まれる。Table 2 に CCD 型 X 線検出器の性能特性を示す。

空間分解能をさらに向上させるために、Si(111)完全結晶の非対称反射を用いた X 線拡大器を CCD 型 X 線検出器の上流に配置した X 線イメージングシステム (Fig. 2) を製作し、その性能評価を行った。Figure 3 は X 線拡大結晶で一次元方向に拡大したニッケルメッシュ像を示す。結晶拡大率は、それぞれ(a) $\times 1.0$, (b) $\times 6.3$, (c) $\times 23.4$ である。Figure 4 にはタンタル板のエッジ像を示す (結晶拡大率 $\times 12.8$)。ナイフエッジでのフレネル回折像を観察することができる。Figure 4 の白線に沿った強度分布、およびその理論計算値を Fig. 5 に示す。両者はよく一致している。フレネル回折像は、結晶拡大率 $\times 6.3$ 以上で確認されたので、結晶拡大率 $\times 6.3$ 以上ではナイフエッジでのフレネル回折を考慮して空間分解能の評価を行った。

Figure 6 に結晶拡大率に対する空間分解能を示す。結

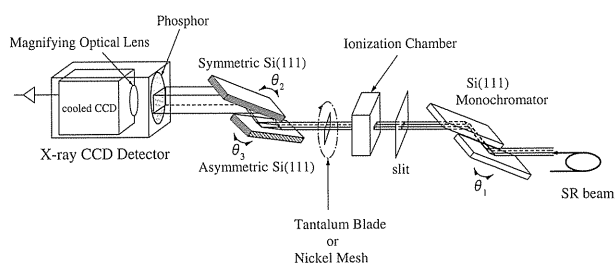


Figure 2. Experimental setup of the high-spatial-resolution X-ray CCD detector with one dimensional X-ray magnifier. The energy of the incident beam was tuned at 7.709 keV with a double-crystal Si(111) monochromator. The X-ray beam transmitted by the sample is vertically expanded by an asymmetrically-cut first crystal. The X-ray beam reflected back by a symmetrically-cut second crystal is incident on the X-ray CCD camera. The X-ray CCD camera is controlled by a personal computer via a serial data link. This imaging system can be extended to two-dimensional imaging system by placing another set of asymmetrically-cut crystal perpendicularly.

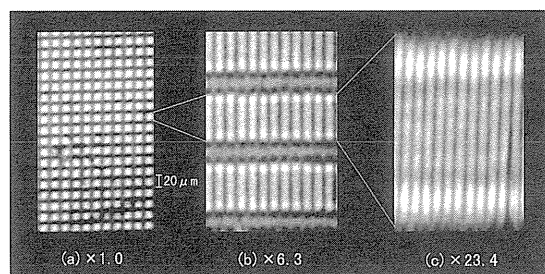


Figure 3. Images of nickel meshes with $20\ \mu m$ spacing taken with the X-ray CCD camera with the one-dimensional X-ray magnification. The magnification factors of the X-ray magnifier are (a) $\times 1.0$, (b) $\times 6.3$, and (c) $\times 23.4$.

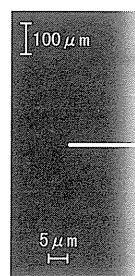


Figure 4. Fresnel-diffraction image at the knife-edge with a magnification factor of $\times 12.8$.

晶拡大率を上げると空間分解能が向上するが、 $1\ \mu m$ 程度で漸近する。この原因は、X 線が結晶表面から結晶内に進入することによって結晶内でビームが広がること、また、ビーム発散により試料から拡大結晶の間でビームが広がりこと、であると考えられる。Figure 6 の実線は、これらのビーム広がりを考慮して計算した空間分解能であり、実験値と良く一致している。すなわち、結晶拡大を用いて得られる空間分解能は、 $1\ \mu m$ 程度が限界であると結論できる。2組の X 線拡大結晶を互いに直交させて配置

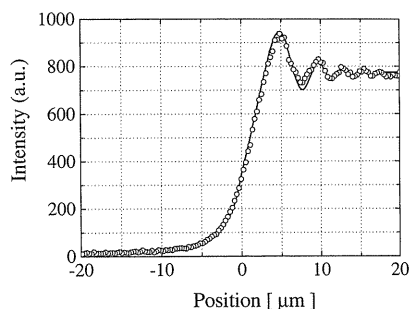


Figure 5. The measured (open circles) and calculated (solid line) intensity profile across the knife-edge. The measured intensity profile was obtained along the white line in the Fresnel-diffraction image.

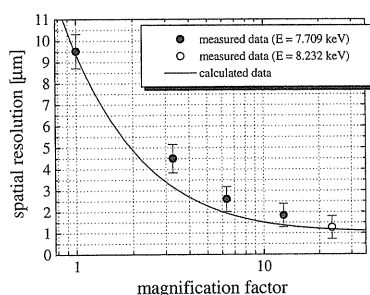


Figure 6. The measured spatial resolution in terms of full width at half-maximum (FWHM) of line spread function (LSF) achieved with the X-ray CCD detector with the one-dimensional X-ray magnification together with calculated curves. The solid line includes the effects of the blurring due to the extinction distance in crystal and delete the distance from the sample to the asymmetric crystal (70 mm).

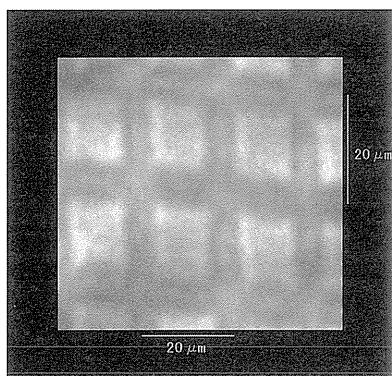


Figure 7. X-ray image of nickel meshes with 20 μm spacing taken with the X-ray CCD camera with two-dimensional X-ray magnification. The magnification factors are $\times 6.3$ in the horizontal direction, and $\times 7.1$ in the vertical direction.

すれば、2次元的にX線像を拡大することができる。

Figure 7には、ニッケルメッシュ像を2組のX線拡大結晶で2次元的に拡大したX線吸収画像を示す。

3. X線偏光スイッチング

X線領域の直線偏光依存の吸収スペクトルは、Templetonらによって、1980年に初めて測定された¹⁰⁾。彼らは、偏光電磁石のon-axisの直線偏光X線を用いて、試料を光軸周りに90度回転する方法で、直線二色性のスペクトルを測定した。この方法は、偏光XAFSとして最近応用が広がりつつある¹¹⁾。しかしながら、この方法は試料の厚さムラ、ビーム強度の場所ムラの影響を受けやすく、直線偏光コントラストのイメージング法にまで拡張することはできない。また、円二色性スペクトルの測定は、1987年にSchutzらによって偏光電磁石のoff-axisの楕円偏光を用いて行われた⁸⁾。その後、円偏光X線を発生する挿入光源を用いた磁気円二色性スペクトルの測定もさかんになりつつある。off-axisによる円偏光硬X線を利用する場合、X線強度がoff-axisで減少する程度が大きいこともあり、軟X線のように高い円偏光度を得ることはできない。(強度15%で、円偏光度90%) また、円偏光を発生する挿入光源を用いる場合でも、下流に設置する光学素子の影響で偏光度が低下するという問題がある。これに対して、透過型X線移相子を用いてX線の偏光状態を制御し、縦偏光と横偏光、または右円偏光と左円偏光をスイッチングする方法は、高い偏光度を得られると云う点で、また、ビーム位置変動やビーム内強度分布の影響を受けないと云う点で、偏光コントラストをイメージングする為の偏光生成手法として優れている。しかし、既存の透過型X線移相子を用いた場合、移相子への入射ビームの角度発散に伴う収差(光軸収差)や移相子結晶内部でのX線のポインティングベクトルのずれに起因する出射ビーム位置の変動という問題が存在する。さらに、移相子をビーム軸に挿入したままでの水平偏光の生成では、移相子をブラッグ角から十分に離さなければならないので、水平偏光と垂直偏光の高速スイッチングは困難となる。

そこで、これらの問題を解決するために我々は収差補償型X線移相子を開発した。収差補償型X線移相子は、著者の一人(K.O.)が発案したもので、二枚の透過型移相子を組み合わせることで光軸収差を補償する二象限移相子¹²⁾、および、四枚の透過型移相子を組み合わせることで光軸収差と色収差を同時に補償する四象限移相子がある。前者のタイプは、二枚の透過型移相子を、ブラッグ反射がお互いが逆方向になるように配置したものである。この場合、X線のビーム角度広がりに対する第一移相子と第二移相子の移相差の勾配が逆方向となり、光軸収差を相殺することができる。また、第一移相子と第二移相子のポインティングベクトルのずれの方向も逆になるので、入射位置と出射位置は一致する。水平偏光を生成する際も、第一移相子と第二移相子で作る移相シフトを逆にすれば、移相子をブラッグ角から大きく離さなくても良い。このため、水平偏光と垂直偏光の高速スイッチングも容易に行える。

X線偏光子によって得た水平偏光を移相子によって垂

直偏光に変換する場合、得られる垂直偏光の直線偏光度は、従来一枚移相子では89%、二象限移相子では95%、四象限移相子では99%である。移相子によるX線透過率は、コバルト吸収端でそれぞれ60%、36%、13%、ニッケル吸収端ではそれぞれ70%、49%、24%である。

4. X線偏光コントラストイメージング

4.1 実験配置

前述した高分解能 CCD 型 X 線検出器と X 線偏光スイッチング光学素子を組み合わせて製作した X 線偏光コントラストイメージングの実験配置を Fig. 8 に示す。X 線偏光スイッチング光学素子は、4 回のブラッグ反射を与えるシリコン422チャンネルカットの X 線偏光子、2 枚のダイヤモンド111透過型 X 線移相子から成る。透過型 X 線移相子は、面方位<001>、厚さ約300 μm のダイヤモンド結晶である。移相子は、111反射を与え、散乱面が水平面から45°傾いている。白色の放射光ビームは、X 線偏光子により単色化されかつ高度の水平直線偏光に変換される。この X 線ビームは2枚の透過型 X 線移相子に入射し、そこで水平偏光と垂直偏光、または、右円偏光と左円偏光にスイッチングされる。ここで生成される X 線偏光の水平偏光度は99.99%、垂直偏光度は95%である。また、左右の円偏光度は95%以上と見積もられる。試料を透過した X 線像は高分解能 CCD 型 X 線検出器で記録される。X 線のエネルギーはコバルト K 吸収端 (7709 eV) 近傍に調整した。

4.2 解析方法

ここでは、偏光コントラスト像を得る手順を簡単に述べる。試料を透過した X 線画像 $I_t(r)$ は、CCD 型 X 線検出器の暗電流を差し引いた後、試料の上流のイオンチェンバー (IC₂) で強度の規格化を行うことによって得られる。試料がないときの X 線画像 $I_0(r)$ を同様に求め、これらの画像からある偏光状態での吸収コントラスト像を $-\log(I_t(r)/I_0(r))$ によって求める。ここで得た吸収コントラスト像では、検出器の感度ムラおよび入射 X 線ビーム内での強度ムラによるコントラストが自動的に補正されている。しかし、試料の厚さムラによるコントラストが含まれてい

るので、その影響を補正して偏光によるコントラストを抽出する必要がある。我々は入射 X 線の偏光をスイッチングして試料の吸収コントラスト像を得ているので、試料の厚さムラによるコントラストを差し引くには、ただ単に水平偏光と垂直偏光に対する吸収コントラスト画像の差 (または右円偏光と左円偏光に対する吸収画像の差) を求め、それをそれぞれの吸収コントラスト画像の和で割れば良い。すなわち、

$$\begin{aligned} XLD(r) &= \frac{\mu_1(r) - \mu_2(r)}{\mu_1(r) + \mu_2(r)} \\ &= \frac{t(r) \cdot \mu_1(r) - \mu_2(r)}{t(r) \cdot \mu_1(r) + \mu_2(r)} \\ &= \frac{(\mu t)_1(r) - (\mu t)_2(r)}{(\mu t)_1(r) + (\mu t)_2(r)} \\ &= \frac{\log\left(\frac{I_t}{I_0}\right)_1 - \log\left(\frac{I_t}{I_0}\right)_2}{\log\left(\frac{I_t}{I_0}\right)_1 + \log\left(\frac{I_t}{I_0}\right)_2} \end{aligned}$$

により、偏光に起因するコントラストのみを抽出して画像化することができる。最後に、X 線光子統計や CCD の読み取りノイズによる揺らぎノイズを減少させるために10ピクセル×10ピクセルを束にする処理 (ビンニング処理) を行い偏光コントラスト画像を得る。

5. X線偏光イメージングの応用

5.1 X線自然直線二色性偏光コントラストの観測

試料としてコバルト hcp 単結晶を用いた。この試料は厚さ12 μm の薄片で、異方軸である c 軸が薄片面内にある。まず始めに、我々は、四象限移相子を用いてコバルト K 吸収端 (7709 eV) 近傍で、X 線直線二色性スペクトルを測定した。四象限移相子で生成される X 線ビームの水平偏光度は99.99%、垂直偏光度は99%である。エネルギー掃引は、X 線偏光子のブラッグ角を変化させながら、1 eV のエネルギーステップで行った。Figure 9 に X 線直線二色性スペクトル (実線) と吸収曲線 (波線) を示す。測定された X 線直線二色性スペクトルは、コバルト K 吸

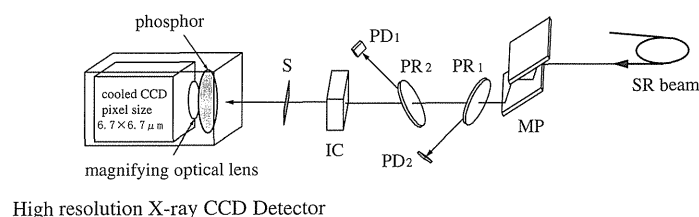


Figure 8. Experimental setup for imaging due to X-ray dichroism. MP, silicon 4 2 2 monochromating polarizer; PR₁ and PR₂, first and second diamond 1 1 1 phase retarders; PD₁, PIN photo-diode monitoring X-rays reflected by the first phase retarder; PD₂, PIN photo-diode monitoring X-rays reflected by the second phase retarder; IC, ionization chamber monitoring X-rays incident to the sample; S, sample.

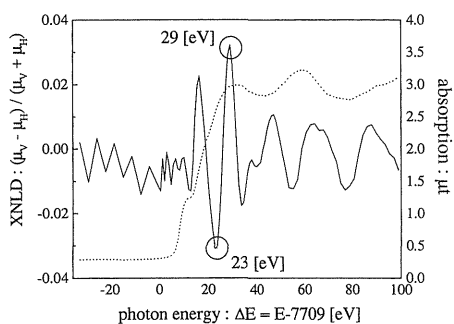


Figure 9. X-ray linear dichroism (XLD) spectrum of a hcp cobalt single crystal with its absorption spectrum, which was measured with the quadruple X-ray phase retarders.

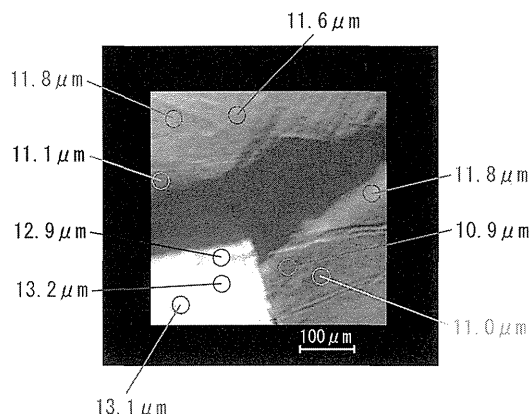


Figure 11. Image with contrasts due to non-uniformity of the sample thickness at an X-ray energy of 7732 eV (23 eV above the cobalt K-edge). The numerals marked in the image indicate the thicknesses of respective positions.

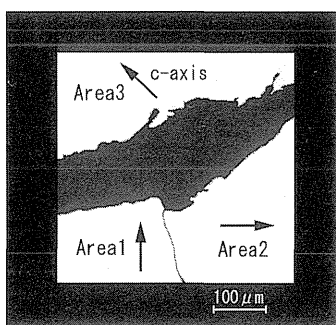


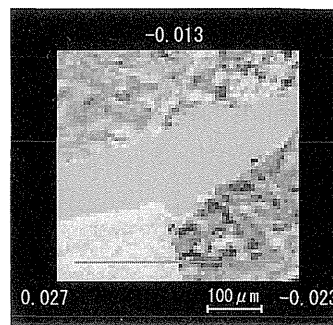
Figure 10. Arrangement of three pieces of the hcp cobalt single crystals in the CCD field of view. Directions of c-axes are indicated by arrows.

収端 (7709 eV) の高エネルギー側23 eV と29 eV でそれぞれマイナス3%, プラス3%のピークを示す。そこで、X線直線二色性による最大の偏光コントラストが観察できるように、X線エネルギーをこの2つエネルギーに固定してイメージングの実験を行った。

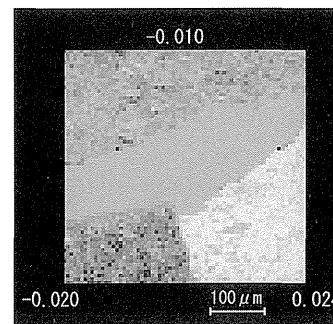
イメージングの実験では、試料のコバルト hcp 単結晶を3つに分割し、c軸が面内で水平軸からそれぞれ0 deg., 45 deg., 90 deg. になるように回転して置き、それらが CCD 型 X線検出器の視野の中に入るように配置した (Fig. 10)。ここでは、この3つの領域をエリア1 (90 deg.), エリア2 (0 deg.), エリア3 (45 deg.) と呼ぶことにする。CCD 型 X線検出器の視野は、約686 μm × 858 μm である。

Figure 11に試料の厚さムラによるコントラスト像を示す。画像の中の黒の部分は透過 X線の強度が高く、白の部分は低いことを表す。画像の中に示されている数値は、それぞれの位置における試料の厚さを示している。

画像演算により、試料の厚さムラを相殺して得られた自然直線二色性による偏光コントラスト像を Fig. 12に示す。コバルト K 吸収端 (7709 eV) から23 eV 高いエネルギーでは、エリア1, 2, 3はそれぞれ、白、黒、グレーを示した。これは、透過 X線の強度がエリア1で最も高く、



(a)



(b)

Figure 12. Images due to X-ray linear dichroism (XLD) taken at 23 eV (a), and 29 eV (b) above the cobalt K-edge after the correction with non-uniformity of the sample thickness.

エリア2で最も低いことを表している。それぞれのエリアの画素値の平均値から X線直線二色性の大きさを計算すると、エリア1, 2, 3でそれぞれ0.027, -0.023, -0.013であった。コバルト K 吸収端 (7709 eV) から29 eV 高いエネルギーでのコントラストは、エリア3では変わらず、エリア1とエリア2で反転した。この時、各エリアの画素値の平均値から求めた X線直線二色性の値は、

エリア1, 2, 3でそれぞれ -0.020 , 0.024 , -0.010 である。これらの値は、四象限移相子を用いて測定したX線直線二色性スペクトルの値とほぼ一致している。従って、これらのコントラストは、c軸の配向、つまり、hcpコバルト単結晶のX線直線二色性に起因していると結論づけることができる。

ここで、直線二色性によるコントラストの検出限界について考察してみたい。我々は偏光をスイッチングしてコントラスト像を測定しているので、検出器の場所的な感度ムラ、入射X線ビーム内の強度ムラに起因するコントラストの影響を受けずに測定を行うことができる。また、試料の厚さムラによるコントラストも相殺することができる。従って、系統的な誤差はすべて相殺されるので、統計的な揺らぎのみを考察すれば良い。Figure 12(a)の実線に沿った直線二色性プロファイルを図13に示す。Figure 13(a)と(b)は、それぞれ10ピクセル \times 10ピクセルのビニング処理の前後のプロファイルを示す。直線二色性コントラストに現れる揺らぎ(σ_{XLD})は、次式に示すように、X線光子統計に起因する揺らぎ(σ_{xph})とCCD読み出しノイズに起因する揺らぎ(σ_{readout})で説明することができる。

$$\sigma_{\text{XLD}} = \sqrt{\sigma_{\text{xph}}^2 + \sigma_{\text{readout}}^2}$$

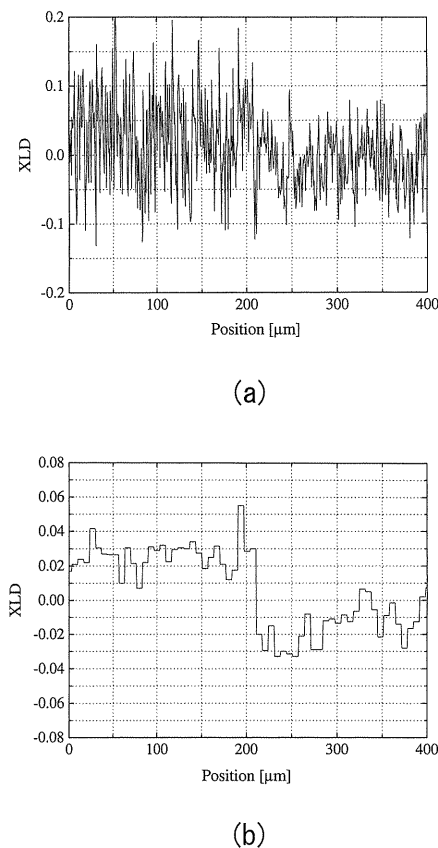


Figure 13. X-ray linear dichroism (XLD) profiles along the line in Fig. 12(a). (a) without a binning, (b) with a 10 \times 10 binning.

CCD読み出しノイズに起因する揺らぎ(σ_{readout})は、CCDの読み出しノイズ(~ 5 e-h rms)とADコンバーターの増幅率(0.06 e-h/ADC)から 4.3×10^{-2} と見積ることができる。これに対して、光子統計に起因する揺らぎ(σ_{xph})は、光子 \cdot 信号変換率(0.34 e-h/xph)から約 2.1×10^{-1} と見積られる。しかし、CCD型X線検出器の空間分解能が約 $5.3 \mu\text{m}$ (画像ピクセル約10個に相当)であるため、隣接ピクセル間での信号のクロストーク、つまり、ボケのために信号の平均化操作が起き、光子統計に起因する揺らぎ(σ_{xph})は約1/10程度になる。その結果、光子統計に起因する揺らぎ(σ_{xph})は、約 2.1×10^{-2} となり、CCD読み出しノイズによる揺らぎ(4.3×10^{-2})と合わせると、全統計揺らぎは約 4.8×10^{-2} となる。この値は、Fig. 13(a)の統計揺らぎ $\sim 5 \times 10^{-2}$ とほぼ一致するので、この2つの統計揺らぎにより偏光コントラスト像の揺らぎを説明できると考えられる。

10ピクセル \times 10ピクセルのビニング処理によって、直線二色性コントラストの揺らぎは、ビニング処理前の1/10($\sim 5 \times 10^{-3}$)に減少する。CCD型X線検出器の点像分布関数の半値幅($\sim 5 \mu\text{m}$)は、画像のピクセルサイズの約10倍であるので、ビニング処理による空間分解能の劣化は無視できる程度である。

ところで、本測定法では、検出器の場所的な感度ムラ、入射X線ビーム内の強度ムラに起因するコントラストの影響を受けずに測定を行うことができると云うことが大きなメリットである。その結果、コントラストを制限する要因として光子統計に起因する揺らぎ(σ_{xph})とCCD読み出しノイズに起因する揺らぎ(σ_{readout})のみを考慮すれば良い。これらはどちらも、測定時間および測定回数を増やせばそれによって小さくすることができる。

5.2 X線磁気円二色性(MCD)偏光コントラストの観測

試料は、厚さ $4 \mu\text{m}$ のhcpコバルト多結晶を用いた。まず始めに、我々は、二象限移相子を用いてコバルトK吸収端(7709 eV)近傍で、X線円二色性スペクトルを測定した。試料は、793 gaussの磁場の中に入射X線の方向から45 deg.傾けて配置した。エネルギー掃引は、X線偏光子のブラッグ角を変化させながら、1 eVのエネルギーステップで行い、2本のX線磁気円二色性スペクトルを磁場の方向を逆転させて測定した。Figure 14にX線円二色性スペクトル(実線)と吸収曲線(波線)を示す。得られたX線磁気円二色性スペクトルは、コバルトK吸収端(7709 eV)から10 eV高いエネルギーと32 eV高いエネルギーで $\pm 0.3\%$, $\pm 0.2\%$ のピークを示す。イメージングの実験は、この二つのX線エネルギーで行った。

MCDイメージング実験では、試料を二つに分割し、円偏光X線のスピンの方向が、試料の磁化方向に対してそれぞれ平行・反平行となるように磁場(793 gauss)の中に配置し、二つの試料を透過した偏光X線がCCD型X

線検出器の視野の中にはいるように配置した (Fig. 15)。磁場の方向は、試料の表面とそれぞれ+45 deg., -45 deg. をなしている。

画像演算により、試料の厚さムラを相殺した後の X 線磁気円二色性 (MCD) 偏光コントラストを Fig. 16 に示す。イメージングは、磁気円二色性の値が最大 (+0.3%) を示しているコバルト K 吸収端 (7709 eV) から 10 eV 高

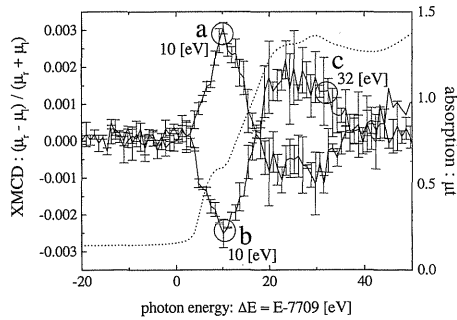


Figure 14. X-ray magnetic circular dichroism (MCD) spectra (solid line and dashed line) in hcp cobalt poly-crystals with the absorption spectrum (dotted line), which were measured by the X-ray polarimeter. These spectra were recorded with opposite magnetic fields, parallel (solid line) and anti-parallel (dashed line) to the photon spin direction.

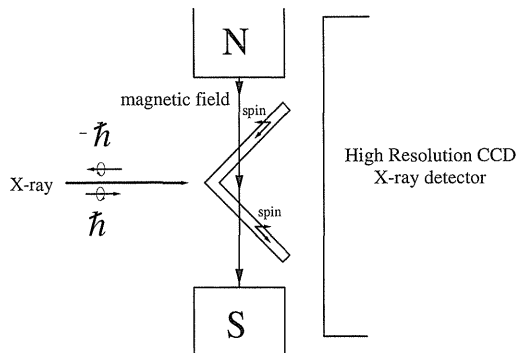


Figure 15. Plan view of the arrangement around the sample. The photon spin direction of circular polarization and the magnetization direction were parallel in one area while anti-parallel in another area.

いエネルギー (a), 同じエネルギーで磁場の方向を反転させた状態 (b), X 線磁気円二色性の符号が反転する値 (+0.2%) を示すコバルト K 吸収端から 32 eV 高いエネルギー (c) で行った。(a) における画像には、ふたつのエリアにコントラストが見られる。このコントラストは、磁場の方向の反転により反転した (b)。さらに、エネルギーを変化させることによって再びコントラストが反転した (c)。従って、これらのコントラストは、磁化方向、つまり、hcp コバルト多結晶の X 線磁気円二色性に起因していると結論づけることができる。画像中に示している数値は、CCD 型 X 線検出器で得られた画像の強度データから求めた X 線磁気円二色性の値で、スペクトロスコピーによる値とはほぼ一致していることがわかる。しかしながら、X 線直線二色性の場合と同様にわずかな差が見られる。これは、X 線磁気円二色性イメージングとスペクトロスコピーの試料の配置の相違から来ると考えられる。

Figure 16 の X 線磁気円二色性偏光コントラストに見られる統計的な揺らぎは、X 線自然直線二色性偏光コントラストのそれと同様に、光子統計と CCD 読み出しノイズに起因する統計揺らぎで説明できる。

6. まとめ

我々が現在開発している X 線偏光顕微鏡の方法・原理とそれを用いて測定した偏光コントラスト像について紹介した。ただし、ここで紹介した観察例は、硬 X 線領域の偏光コントラスト像が観察できるということを示しただけで、顕微といえる空間分解能での観察例ではない。しかしながら、現時点では、高分解能 CCD 型 X 線検出器の空間分解能 (5 μm) で 0.1% 程度の偏光コントラストのイメージングを行うことは可能である。また、非対称反射を用いた結晶拡大器を高分解能 CCD 型 X 線検出器に組み合わせてイメージングを行えば、空間分解能は 1 μm 程度まで向上する。さらに空間分解能を上げるためには、試料の下流に結像ゾンプレートを置き、高分解能 CCD 型 X 線検出器に拡大像を結像させる方法を採用したいと考えている。この場合、空間分解能は 0.15 μm に向上することが期待できる。また、硬 X 線の高い透過力を生かしてトモグラフ

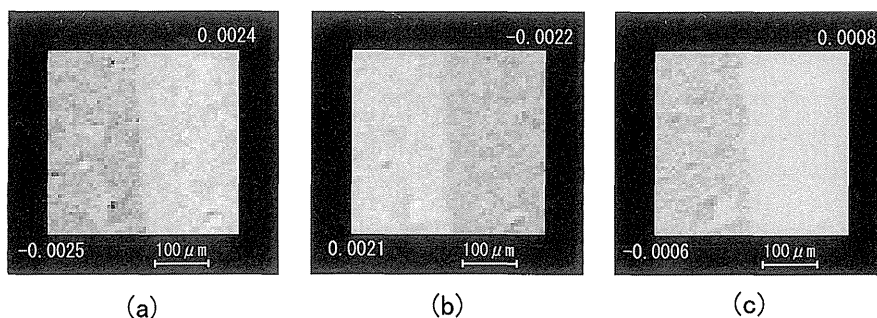


Figure 16. Images due to X-ray magnetic circular dichroism (MCD) taken at 10 eV ((a), (b)) and 32 eV (c) above the K-absorption edge (7709 eV) after the correction with the non-uniformity of the sample thickness.

ィーの手法を導入して、3次元空間の構造による偏光コン
トラスト像を観察することにも挑戦したいと考えている。

本研究は、PFの共同利用実験課題 (No. 97G-075) と
して行われた。

参考文献

- 1) 上エ地義徳, 沖津康平, 佐藤公法, 雨宮慶幸: 日本放射光
学会誌 **13**, 48 (2000).
- 2) K. Okitsu, T. Oguchi, H. Maruyama and Y. Amemiya: *J.*
Synchrotron Rad. **5**, 995 (1998).
- 3) K. Okitsu, Y. Ueji, T. Oguchi, Y. Hasegawa, Y. Ohashi and
Y. Amemiya: *J. Synchrotron Rad.* **5**, 1055 (1998).
- 4) K. Sato, Y. Hasegawa, K. Kondo, K. Miyazaki, T. Matsushi-
ta and Y. Amemiya: submitted to *Rev. Sci. Instrum.*
- 5) K. Sato, K. Okitsu, Y. Ueji, T. Matsushita and Y. Amemiya:
submitted to *J. Synchrotron Rad.*
- 6) K. Okitsu: *J. Phys. Soc. Jpn.* **62**, 911 (1993).
- 7) K. Hirano: *J. Appl. Phys.* **79**, 3365 (1996).
- 8) G. Schutz, W. Wagner, W. Wilhelm, P. Kienle, R. Zeller, R.
Frahm and G. Materlik: *Phys. Rev. Lett.* **58**, 737 (1987).
- 9) 圓山 裕: 固体物理 **28**, 453 (1993).
- 10) D. H. Templeton and L. K. Templeton: *Acta Cryst. A* **36**,
237 (1980).
- 11) K. Asakura, T. Kubota, W. J. Chun, Y. Iwasawa, K. Ohtani
and T. Fujikawa: *J. Synchrotron Rad.* **6**, 439 (1999).
- 12) K. Okitsu, Y. Ueji, K. Sato and Y. Amemiya: submitted to *J.*
Synchrotron Rad.