

光軸収差と色収差を補償する四象限 X 線移相子システム

沖津康平^{1*}, 上工地義徳², 佐藤公法³, 雨宮慶幸²

¹東京大学工学部総合研究機構, ²東京大学大学院新領域創成科学研究科物質系専攻,
³産業技術総合研究所

X-Ray Four-Quadrant Phase Retarder System Compensating for Off-Axis and Chromatic Aberrations

Kouhei OKITSU¹, Yoshinori UEJI², Kiminori SATO³ and Yoshiyuki AMEMIYA²

¹Institute of Engineering Innovation, School of Engineering, The University of Tokyo,

²Department of Advanced Materials Science, Graduate School of Frontier Sciences, The University of Tokyo,

³National Institute of Advanced Industrial Science and Technology

Abstract

An X-ray optical system composed of four transmission-type phase retarders which can compensate for both off-axis and chromatic aberrations (phase-shift inhomogeneity due to angular divergence and energy spread of incident X-rays), has been newly developed. The scattering planes of four phase retarders were set to be inclined by 45 deg, 135 deg (= 45 deg + 90 deg), 225 deg (= 45 deg + 180 deg) and 315 deg (= 45 deg + 270 deg), respectively, with respect to the direction of incident polarization. We have obtained vertically polarized X-rays with 0.98 degree of vertical linear polarization converted from horizontally polarized synchrotron X-radiation by using the four-quadrant phase retarders, whereas the degree of vertical linear polarization generated by quadruple phase retarders of one-quadrant geometry (giving Bragg reflections in the identical direction and corresponding to a single phase retarder of the same total thickness; 1246 μm) was 0.89. This estimation was made at the cobalt *K*-absorption edge (7709 eV) which allowed 13% of incident X-rays to be transmitted through the four diamond crystal phase retarders, in a condition that horizontal beam divergence and energy spread of incident X-rays were 45 arcsec and 1.5 eV, respectively.

1. はじめに

1.1 X 線移相子にまつわる歴史的背景

方解石の結晶を通して物体を観察すると物体が二重になって見えることを発見したのは Bartholinus (1669年) である。これが光の偏り, すなわち偏光の発見であるから, 可視光域における偏光の研究には300年以上におよぶ歴史がある。偏光子, 検光子, 移相子といった可視光域における偏光光学素子は19世紀にはすでに出そろっており, カー効果, ポッケルス効果といった電気光学効果や, 磁気光学効果であるファラデー効果などを用いて可視光の偏光を自在にコントロールする手法には, すでにおよそ1世紀にわたる技術の蓄積がある。今日, 可視光の偏光解析は, 物理, 化学, 生理医学などの広い研究分野に対して一般的な観測手法を非常に多く提供し, 活発に応用されている。

一方, 1912年に Laue が X 線の結晶による回折現象を発見した後, 1910年代から1930年代にかけて, Darwin, Ewald, Laue らによって完全結晶中で回折を起こす X 線の振る舞いを記述する理論(動力的回折理論)が構築された。1939年, Moliere¹⁾は, この動力的回折理論に基づいて, 完全結晶を X 線に対する偏光光学素子として応用すれば, 可視光と同様な偏光解析が X 線に対して可

能であることを指摘した。しかし当時は完全結晶製造の技術がなかったため, この指摘は長く実現しなかった。1950年代の終わりに極めて完全度の高いシリコン結晶の育成技術が開発され, 動力的回折理論の研究は再び盛んになった。この流れの中で1972年, Skalicky と Malgrange²⁾は完全結晶を用いた X 線移相子の可能性を指摘した。以降, 放射光の実用化の進展とともにブラッグ反射された X 線を用いる反射型移相子の可能性が模索されたが³⁻⁷⁾一般的な実用には至らなかった。この間, 1979年には Hart と Rodrigues⁸⁾によって極めて消光比の高い X 線偏光子および検光子が発明されている。

一方, 放射光の実用が進むにつれ, 1980年代以降, 偏光 X 線を用いた物性研究が次第に活発に行われるようになる。1980年の Templeton 夫妻の発見⁹⁾により, 結晶の異方性の研究手法として Polarized XAFS という新分野が開拓された¹⁰⁾。1983年, Dmitrienko¹¹⁾により理論的に予測された ATS (Anisotropy of the Tensor of Susceptibility) 散乱は, 辻 *et al.*¹²⁾, 長野 *et al.*¹³⁾, 石田¹⁴⁾らによって実験的に観測され, 村上 *et al.*^{15,16)}によって結晶の電荷, 軌道秩序の観測へと応用された。これらは, X 線の偏光と結晶構造異方性との相関に関わるものであったが, 偏光 X 線は磁性研究にも盛んに応用されるようになって

いく。1987年, Schütz *et al.*¹⁷⁾により off-axis 放射光を用いて発見された X 線磁気円二色性 (XMCD) の研究は, 現在, 世界的な活況を呈しており, これに対応するファラデー効果は, 1990, 1991年に Siddons, Hart, 雨宮ら^{18,19)}によって報告されている。XMCD の計測手段としては, 挿入光源 (楕円偏光マルチポールウィグラー) からの放射光²⁰⁾も用いられるようになった²¹⁾。また1985年に並河 *et al.*²²⁾によって磁気共鳴ブラッグ散乱が発見され, これの直線偏光 X 線および円偏光 X 線を入射したときの偏光スペクトルの変化は, それぞれ, 森 *et al.*^{23,24)}, 河田 *et al.*²⁵⁾によって報告されている。このような状況の下で, X 線の偏光を自在に制御する手段を求めめる機運が, 次第に高まっていったと言っている。

1991年, 平野, 石川, 菊田は, ブラッグ条件の近傍で完全結晶を透過する X 線を用いる透過型 X 線移相子²⁶⁻³²⁾を開発した。反射型および透過型 X 線移相子はいずれも σ 偏光 X 線と π 偏光 X 線の位相差を利用するものであるが, 平野らは, この位相差の X 線入射角に対する依存性が, 透過波の場合, 反射波に比較して桁違いに小さいことに着目したのである。このことによって, 透過型移相子は反射型移相子に比較して格段に実用的なものとなり, XMCD 測定の手段として, 活用されるようになった³³⁻³⁵⁾。

1.2 光軸収差を補償する二象限 X 線移相子

それでもかつ透過型 X 線移相子には, 入射 X 線の角度発散による位相シフト不均一 (光軸収差) の問題が存在する。それゆえ, 平野, 石川, 菊田によって指摘されているように³⁰⁾, 均一な位相シフトによる高い完全偏光度の X 線が必要な場合, X 線ビームの角度発散を抑えることが要求される。透過型 X 線移相子における光軸収差の問題を克服するために, われわれは既に, 逆方向へのブラッグ反射を与える二象限移相子を開発し, 光軸収差の補償効果を確認している³⁶⁾。

Fig. 1 は, 光軸収差を補償する二象限 X 線移相子の配置と原理を示している。**Fig. 1** の上部に描かれた単位ベクトル e_x, e_y, e_z は, 直交座標系を構成している。入射 X 線は直線偏光しており, その振動方向は, $e_x + e_y$ である。したがって, 図が描かれている平面は, 入射 X 線の直線偏光方向に対して45度傾いている。左の図 (**Fig. 1(a)**) は, 2枚のダイヤモンド結晶が, 非対称ラウエケースで逆方向へのブラッグ反射を与えるようにセットされている配置を示している。**Fig. 1(a)**に描かれた A, B, C の X 線光路を考えたとき, A の光路の X 線は, B の光路の X 線より, 第1移相子に対して, より高角で入射するが, 第2移相子に対しては低角で入射する。C の光路の X 線については, その逆となる。右上と右下の図 (**Fig. 1(b)**と**Fig. 1(c)**) は, 第1および第2移相子に対応する分散面を示している。 $\pi(x)$ 偏光に対する分散面は, $\sigma(y)$ 偏光に対する分散面より, $\cos(2\theta_B)$ 倍だけ漸近線に近い。ここで θ_B は, 移相子結晶のブラッグ角である。動力学的回折

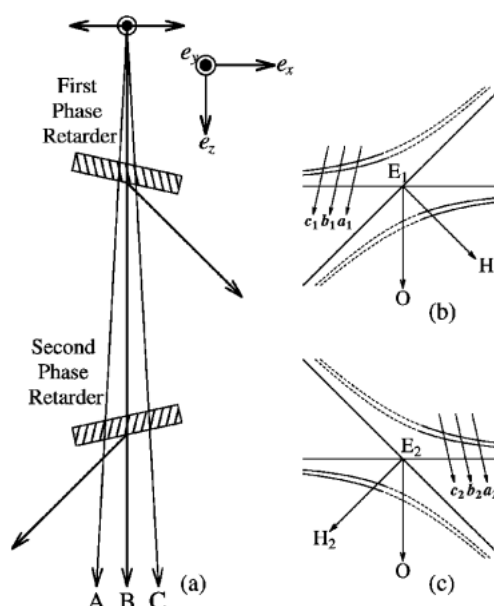


Figure 1. The left drawing (a) shows the practical arrangement of X-ray double phase retarder system compensating for the off-axis aberration of transmission-type phase retarder. The right upper (b) and right lower (c) drawings show dispersion surfaces in the reciprocal space corresponding to the first and second phase retarders, respectively. a_1, b_1 and c_1 in (b) and a_2, b_2 and c_2 in (c) are vectors normal to crystal surfaces of the first and second phase retarders which excite tie points on the dispersion surfaces with X-ray paths A, B and C, respectively, in the drawing (a)³⁶⁾.

理論によれば, ラウエケースの場合, ブラッグ条件より低角で入射する X 線が, 分散面上の4つのタイポイント ($\sigma(y)$ 偏光と $\pi(x)$ 偏光に対してそれぞれ2つずつ) を励起するとき, 透過波の振幅の多くは, Lorentz 点, E_1 および E_2 の外側の分散面上の励起点による振幅で占められることになる。X 線がブラッグ条件より高角で入射するとき, 状況は逆となる。**Fig. 1(b)**と**Fig. 1(c)**においては, 透過波を考える際, 分散面の重要な部分とさほど重要でない部分を, 実線と破線で描くことにより, この事情を示している。このことにより, 透過型 X 線移相子がブラッグ条件より低角で働くとき, 透過波の $\sigma(y)$ 偏光の位相が遅れることとなる。第1および第2移相子が, とともに $\sigma(y)$ 偏光に位相遅れを与えるように機能するとき, 第1移相子に対しては**Fig. 1(b)**の左上の, 第2移相子に対しては**Fig. 1(c)**の右上の分散面が主に励起されていなければならない。このとき, A, B, C の光路で入射する X 線は, **Fig. 1(b)**においては, ベクトル a_1, b_1, c_1 によって, **Fig. 1(c)**においては, ベクトル a_2, b_2, c_2 によって, 分散面を励起することになる。 a_1, b_1, c_1 は, 第1移相子の結晶面法線ベクトルであり, a_2, b_2, c_2 は, 第2移相子の結晶面法線ベクトルである。これらのベクトルの位置は, X 線入射角のブラッグ条件からのズレにより決定される。ここで, σ 偏光と π 偏光の透過波に対する波数ベクトルの差 Δk_0 を導入し, ベクトル a_1 によって与えられる Δk_0 を

$\Delta k_0(\mathbf{a}_1)$ のように表すものとする。Fig. 1(b)から、 $|\Delta k_0(\mathbf{a}_1)| > |\Delta k_0(\mathbf{b}_1)| > |\Delta k_0(\mathbf{c}_1)|$ であることがわかるが、これとは逆に、Fig. 1(c)では、 $|\Delta k_0(\mathbf{a}_2)| < |\Delta k_0(\mathbf{b}_2)| < |\Delta k_0(\mathbf{c}_2)|$ となっていることがわかる。このことにより、第1移相子と第2移相子における位相シフト不均一が相殺され、光軸収差が補償されるのである³⁶⁾。

この事情を更に簡単に示したのが、Fig. 2である。横軸は移相子に対するX線の入射角を、縦軸は、移相子による位相シフト量を示している。 $2\Delta\phi_1$ の曲線が、1枚の移相子を働かせるときの位相シフト量とX線入射角の関係を示している。横軸上に示した α の様な強度分布を持ったX線が入射するとき、この分布は $2\Delta\phi_1$ の曲線に投影されて、左軸に示した β のような位相シフト量の不均一をもたらすことになる。ところが、ちょうど半分の厚さの移相子結晶を2枚用意して、それらがFig. 1のような配置で逆方向への反射を与えるようにすると、それぞれの移相子結晶による位相シフト量の曲線は、 $\Delta\phi_1$ および $\Delta\phi_2$ のようになり、2枚の移相子を透過した後の位相シフト量は、Fig. 2に示した $\Delta\phi_1 + \Delta\phi_2$ のような滑らかな曲線になる。強度分布 α がこの曲線に投影されたとき、右軸に示した γ のようにせまい領域に位相シフト量が分布することになり、結果的に1枚の移相子に比べてより均一な位相シフト量が得られるのである。われわれは、この二象限移相子を用いて、硫酸ニッケル六水和物 α 変態結晶におけるX線自然円二色性(XNCD)を測定することに成功している^{37)*}。さらに、X線自然直線二色性(XNLD)によるイメージング⁴⁰⁻⁴²⁾、X線磁気円二色性(XMCD)に

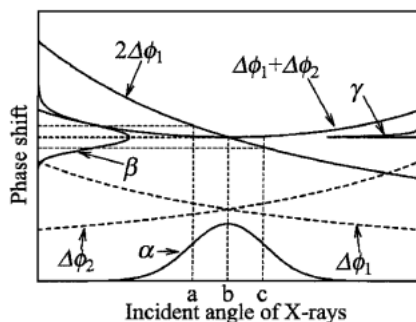


Figure 2. Phase shifts with phase retarders as functions of incident angle of X-rays. Phase shifts, $\Delta\phi_1$ and $\Delta\phi_2$ given by the first and second phase retarders arranged in the anti-parallel geometry, are drawn by dashed curves. Phase shifts given by the double phase retarders (solid curves) arranged in the parallel and anti-parallel geometries are given by $2\Delta\phi_1$ and by $\Delta\phi_1 + \Delta\phi_2$, respectively³⁶⁾.

* XNCDの発見は、Goulon *et al.*³⁸⁾とAlagna *et al.*³⁹⁾によって1998年になされており、われわれの発見は彼らの仕事におよそ半年遅れたものと思われる。ただし、われわれの研究においては、XNCDだけではなくX線自然旋光性(XNCB)をも測定しており、両者の間のKramers-Kronig関係を確かめているため、より決定的な成果であるといえる。

よるイメージング^{40,42-44)}、X線磁気直線二色性(XMLD)によるイメージング^{42,44-46)}がはじめて行われた。特に、X線磁気直線二色性(XMLD)については、この現象そのものの発見となった。しかしながら、透過型X線移相子においては、光軸収差のみならず、X線のエネルギー広がりによる位相シフト不均一(色収差)の問題が存在する。本論文の以下の節において、光軸収差と色収差の両方を補償する四象限移相子の原理と、その有効性を確かめた実験結果を記述する⁴⁷⁾。

2. 四象限X線移相子の収差補償原理

Fig. 3は、波長、 λ と $\lambda + \Delta\lambda$ における分散面を示している。ここで、 $\Delta\lambda$ は、波長の微小な正の差分量である。動力的回折理論によれば、Laueケースにおいて、X線がブラッグ条件より低角で入射した場合、透過X線の振幅の多くは、Fig. 3における上の分散面のタイポイントによる振幅によって占められ、高角で入射した場合、下の分散面のタイポイントによる振幅によって占められる。それゆえ、Fig. 1と同様、Fig. 3においても、透過型X線移相子によって与えられる σ 偏光と π 偏光の位相シフトを考える際に重要な部分とさほど重要でない部分の分散面を、それぞれ実線と破線で描いてある。Fig. 3において、 σ 偏光と π 偏光の位相差は、おおよそ実線で描いてある曲線のギャップによって与えられると考えていい。一方、 $\Delta\lambda$ は、いま、小さな値であると考えているから、

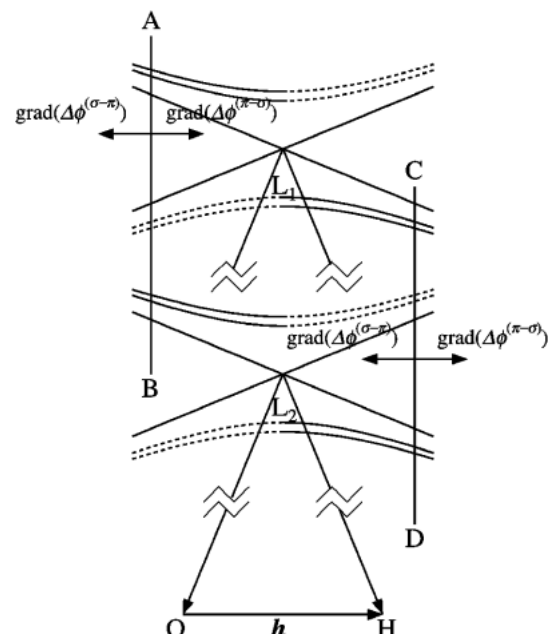


Figure 3. Two sets of dispersion surfaces corresponding to wavelengths λ (upper) and $\lambda + \Delta\lambda$ (lower), where $\Delta\lambda$ is a positive differential value of wavelength. Contour of phase shift (plane AB or CD) between σ - and π -polarizations are perpendicular to scattering vector \mathbf{h} . Gradient vector of phase shift $\Delta\phi^{(\sigma-\pi)} = \phi^{(\sigma)} - \phi^{(\pi)}$ or $\Delta\phi^{(\pi-\sigma)} = \phi^{(\pi)} - \phi^{(\sigma)}$ is evidently perpendicular to plane AB or CD⁴⁷⁾.

Lorentz 点, L_1 と L_2 の周囲の分散面の漸近線からの距離の変化は, 無視し得るほど小さい (L_1 と L_2 は, 波長の差による Lorentz 点のズレを示している) であり, **Fig. 1 (b)** と **1 (c)** における Lorentz 点, E_1 と E_2 の違いとは, 本質的に異なる)。それゆえ, Lorentz 点, L_2 の周囲の分散面は, 近似的に Lorentz 点, L_1 の周囲の分散面が, ただ単にシフトしたものであると考えることができる。ここで, 位相シフトの値 $\Delta\phi^{(\sigma-\pi)} = \phi^{(\sigma)} - \phi^{(\pi)}$ と $\Delta\phi^{(\pi-\sigma)} = \phi^{(\pi)} - \phi^{(\sigma)}$ を導入する。 $\phi^{(\sigma)}$ と $\phi^{(\pi)}$ は, 移相子を透過することにより, σ 偏光と π 偏光の X 線が, 空气中を伝搬する場合と比較して与えられる位相シフトである。あきらかに, $\Delta\phi^{(\sigma-\pi)} = -\Delta\phi^{(\pi-\sigma)}$ である。実数の値, $\Delta\phi^{(\sigma-\pi)}$ と $\Delta\phi^{(\pi-\sigma)}$ は, **Fig. 3** が描かれている三次元の逆空間における関数として分布している。 $\Delta\phi^{(\sigma-\pi)}$ と $\Delta\phi^{(\pi-\sigma)}$ の等位面 (コンター) は, **Fig. 3** に実線の曲線で描かれた σ 偏光と π 偏光に対する分散面のギャップが等しい点の軌跡であるから, 散乱ベクトル \mathbf{h} に垂直な, AB ないしは CD のような等位面となる。位相シフトの勾配 (グラディエント), $\text{grad}\Delta\phi^{(\sigma-\pi)}$ と $\text{grad}\Delta\phi^{(\pi-\sigma)}$ は, 等位面 AB ないしは CD に垂直なベクトルである。ここで, $\text{grad}(\Delta\phi^{(\sigma-\pi)})$ と $\text{grad}(\Delta\phi^{(\pi-\sigma)})$ の向きについて考える。**Fig. 3** 中の Lorentz 点, L_1 と L_2 の左上方においては, σ 偏光の位相が遅れ, この遅れは, ブラッグ条件から離れることによって小さくなる。この場合, **Fig. 3** に示したように, $\text{grad}(\Delta\phi^{(\pi-\sigma)})$ は, 右を向いており, $\text{grad}(\Delta\phi^{(\sigma-\pi)})$ は, 左を向いている。同様な考察に基づいて, Lorentz 点, L_1 と L_2 の右下の部分についても, $\text{grad}(\Delta\phi^{(\pi-\sigma)})$ と $\text{grad}(\Delta\phi^{(\sigma-\pi)})$ の向きは, Lorentz 点の左上についての場合と同じである。**Fig. 3** に示したように, 位相シフト勾配ベクトル (グラディエント) は, X 線の透過方向に対して, 平行, 垂直の両方の成分を持っており, このことにより, 透過型 X 線移相子には, 光軸収差だけでなく, 色収差もが存在することになる。

Fig. 4 は, 光軸収差と色収差の両方を補償する四象限移相子の原理を示している。**Fig. 4** における (Q_1) , (Q_2) , (Q_3) , (Q_4) の部分には, X 線の下流側から見て, 第一,

第二, 第三, 第四象限の方向へのブラッグ反射を与える移相子に対応する分散面を描いてある。以降の記述, および **Fig. 4** と **Fig. 5** においては, 象限の番号は, X 線の下流側から見たように記述するものとする。第一, 第二, 第三, 第四象限移相子の散乱面は, 入射直線偏光の方向の水平単位ベクトルであるベクトル \mathbf{e}_x に対して, 45 deg , 135 deg ($= 45 \text{ deg} + 90 \text{ deg}$), 225 deg ($= 45 \text{ deg} + 180 \text{ deg}$), 315 deg ($= 45 \text{ deg} + 270 \text{ deg}$), 傾いている。 \mathbf{e}_y は, 鉛直な単位ベクトルである。第一および第三象限移相子の場合, 透過 X 線の σ 偏光と π 偏光の方向は, それぞれ, $\mathbf{e}_x - \mathbf{e}_y$ と $\mathbf{e}_x + \mathbf{e}_y$ になる。これとは逆に, 第二および第四象限移相子の場合, σ 偏光と π 偏光の方向は, それぞれ, $\mathbf{e}_x + \mathbf{e}_y$ と $\mathbf{e}_x - \mathbf{e}_y$ になる。この逆転が, 色収差の補償にとって非常に重要である。ここで, 第 n 象限移相子 ($n \in \{1, 2, 3, 4\}$) を用いて, 入射水平直線偏光を, 下流から見て電場ベクトルが反時計回りに回転する楕円偏光に変換する位相差 $\Delta\phi_n^{(L)}$ を定義する。 $n \in \{1, 3\}$ のとき, 正の値の $\Delta\phi_n^{(L)}$ によって π 偏光の位相が遅れなければならないから, $\Delta\phi_n^{(L)}$ は, 次のように与えられる。

$$\Delta\phi_n^{(L)} = \phi_n^{(\sigma-\pi)} = \phi_n^{(\sigma)} - \phi_n^{(\pi)}, \quad \text{where } n \in \{1, 3\}. \quad (1)$$

これとは逆に, $n \in \{2, 4\}$ のとき, $\Delta\phi_n^{(L)}$ は, 次のように与えられる。

$$\Delta\phi_n^{(L)} = \phi_n^{(\pi-\sigma)} = \phi_n^{(\pi)} - \phi_n^{(\sigma)}, \quad \text{where } n \in \{2, 4\}. \quad (2)$$

ここで, $\phi_n^{(\sigma)}$ と $\phi_n^{(\pi)}$ は, 第 n 象限への反射を与える移相子を透過することにより σ 偏光と π 偏光の X 線に与えられる, 空气中と比較しての位相シフトである。上の考察に基づいて, $\text{grad}(\Delta\phi_n^{(L)})$ ($n \in \{1, 2, 3, 4\}$) を **Fig. 4** 中に矢印で示してある。**Fig. 4** に示したように, $\text{grad}(\Delta\phi_1^{(L)}) + \text{grad}(\Delta\phi_3^{(L)})$ は, X 線の下流方向を向いており, $\text{grad}(\Delta\phi_2^{(L)}) + \text{grad}(\Delta\phi_4^{(L)})$ は, X 線の上流方向を向いて

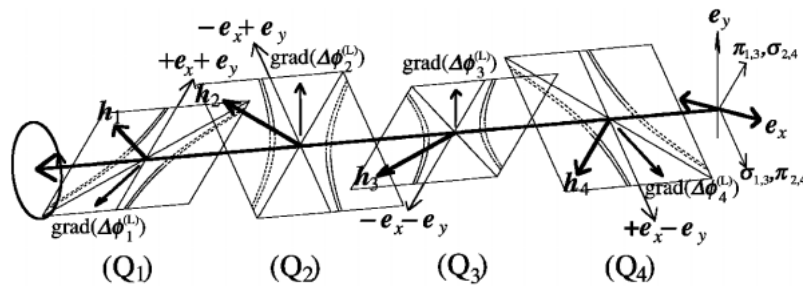


Figure 4. Principle of compensating for both off-axis and chromatic aberrations of transmission-type X-ray phase retarder by using four-quadrant phase retarder system. In parts (Q_1) , (Q_2) , (Q_3) and (Q_4) , dispersion surfaces corresponding to phase retarders giving Bragg reflections in the directions of the first, second, third and fourth quadrants, respectively, viewed from the downstream direction, are drawn⁴⁷⁾.

いる。したがって、ベクトル $\text{grad}(\Delta\phi_n^{(L)})$ の絶対値が同じになるように4枚の移相子をコントロールすることにより、 $\sum_{n=1}^4 \text{grad}(\Delta\phi_n^{(L)}) = 0$ の条件を実現させることができる。

3. 四象限移相子の評価実験

3.1 実験方法

光軸収差と色収差の補償効果を確認するために、**Fig. 5** に示されるような配置の実験を行った。**Figs. 5(a), 5(b), 5(c)**に示される配置は、移相子の配置を除いては同じである。物質構造科学研究所、Photon FactoryのBL-4Aからの白色シンクロトン放射X線は、分光器兼偏光子結晶によってコバルト K 吸収端の波長 (7709 eV) に単色化され、かつ、水平偏光の直線偏光度は非常に高い値になる。分光器兼偏光子結晶は、422の4回反射を対称ブラッグケースで与えるシリコンのチャンネルカット結晶で、水冷されている。また、Hart-Rodriguesのオフセット機構⁶⁾が備えられており、これによって、チャンネルの両サイドに対して約0.6 arcsecのオフセットがかけられている。このオフセット機構と45 degに近いブラッグ角 (46.5015 deg)によって、偏光子の消光比 (σ 偏光の反射率の π 偏光の反射率に対する比) は、動力学的回折理論に基づいて、 10^7 以上であると計算された。これは実験によっても確かめられている。検光子は、水冷されていないという点を除いて偏光子と同様なシリコン結晶である。偏光子と検光子の散乱面は、0.1 deg以内の精度で、平行になるように調整された。ビームサイズは、水平方向に2.5 mm、鉛

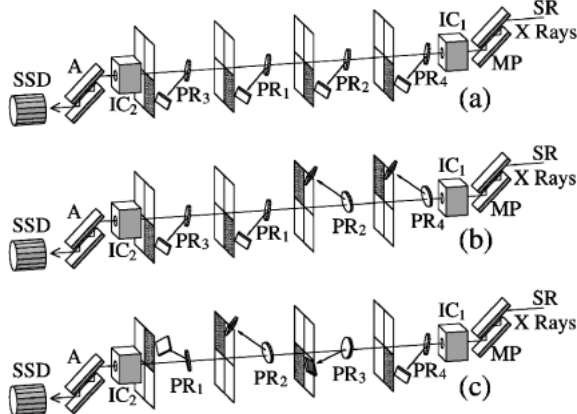


Figure 5. Experimental arrangement of quadruple phase retarders in (a) one-quadrant, (b) two-quadrant and (c) four-quadrant geometries. MP: a silicon channel-cut monochromating polarizer equipped with Hart-Rodrigues' offset mechanism giving four-bounced 422 reflection in a symmetric Bragg geometry, A: an analyzer crystal similar to the polarizer, PR₁, PR₂, PR₃ and PR₄: diamond (100)-oriented phase retarder crystals giving 111 reflection in an asymmetric Laue geometry whose thickness are 318 μm , 314 μm , 301 μm and 313 μm , respectively, IC₁ and IC₂: ionization chambers, SSD: a solid state detector of germanium. Bragg-reflected X-rays from four phase retarders are monitored by four PIN photodiodes⁴⁷⁾.

直方向に2 mmであり、X線の水平方向の角度発散は、およそ45 arcsecであった。鉛直方向のビームサイズと放射光の発光点からの距離 (10 m) から、偏光子に反射されたX線のエネルギー広がり、1.5 eVであると見積もられた。偏光子と検光子結晶は、(+--+、+-+-) 平行配置を構成しているため、1.5 eVのエネルギー広がりを持ったX線の水平直線偏光成分が、検光子結晶のブラッグ条件を満たしていると考えられる。4枚の移相子からなる移相子システムの上流と下流におけるX線強度は、イオンチェンバーIC₁とIC₂によってモニターされた。

移相子結晶PR₁, PR₂, PR₃, PR₄は、およそ直径5 mm程度の円形をした、表面が(100)面のダイヤモンド結晶であり、厚さはそれぞれ、318 μm , 314 μm , 301 μm , 313 μm である。入射X線のおよそ13%が、4枚の移相子を透過する。非対称ラウエケースの111反射を与える4枚の結晶は、次のような3通りの実験配置でセットされた。

- 4枚すべての結晶が、第四象限の方向へのブラッグ反射を与える配置 (一象限配置),
- PR₂とPR₄が、第二象限の方向へのブラッグ反射を与え、PR₁とPR₃が、第四象限の方向へのブラッグ反射を与える配置 (二象限配置),
- PR_n ($n \in \{1, 2, 3, 4\}$) が、第 n 象限へのブラッグ反射を与える配置 (四象限配置)。

ここで一象限、二象限、四象限配置をあえて4枚の移相子によって比較するのは、移相子システムの実効的厚さを同じにして比較するためである。同程度の厚さの移相子結晶を、単に1枚、2枚、4枚用いて比較してしまうと、枚数が少ないほど位相シフトの勾配が急なブラッグ条件の近くで移相子を働かさねばならず、収差に対して厳しい条件を与えることになってしまうからである。4枚のダイヤモンド結晶は、回転軸が45 degないしは-45 deg傾いたゴニオメーターにマウントされた。ゴニオメーターは、1パルスあたり0.09 arcsecで駆動された。4枚の移相子結晶からの反射X線は、4個のPINフォトダイオードでモニターされた。

平野、石川、菊田によれば³¹⁾、透過型X線移相子によって与えられる σ 偏光と π 偏光の間の位相シフトは、近似的に $t/\Delta\theta$ に比例する。ここで、 t は、移相子結晶の厚さ、 $\Delta\theta$ は、移相子に入射するX線のブラッグ条件からのズレである。したがって、**Fig. 4**に描かれた位相シフト勾配ベクトル $\text{grad}(\Delta\theta_n^{(L)})$ の長さは、位相シフトの微分、すなわち $t_n/\Delta\theta_n^2$ に比例する。ここで、 t_n と $\Delta\theta_n$ は、移相子PR_nの厚さとブラッグ条件からの角度のズレである。それゆえ、**Fig. 5(c)**の配置の場合、次のような条件を満たしつつ移相子を回転させれば $\sum_{n=1}^4 \text{grad}(\Delta\theta_n^{(L)}) = 0$ の条件を実現することができる。

Table 1. Experimental results shown in Fig. 6 were obtained with measuring time Mt in sec in angular ranges of $|\Delta\theta_4|^{(Max)} \geq |\Delta\theta_4| \geq |\Delta\theta_4|^{(Min)}$ in arcsec with angular interval of $\Delta\theta_4^{(Step)}$ in arcsec⁴⁷⁾

	$ \Delta\theta_4 ^{(Max)}$	$ \Delta\theta_4 ^{(Min)}$	$\Delta\theta_4^{(Step)}$	Mt
range 1	900.00	180.00	18.00	1.0
range 2	171.00	99.00	9.00	1.0
range 3	90.00	63.00	4.50	2.0
range 4	58.50	49.68	0.18	4.0
range 5	49.50	27.00	4.50	1.0
range 6	25.20	0.00	1.80	1.0

$$\frac{t_1}{\Delta\theta_1^2} = \frac{t_2}{\Delta\theta_2^2} = \frac{t_3}{\Delta\theta_3^2} = \frac{t_4}{\Delta\theta_4^2}. \quad (3)$$

Fig. 5 の (a), (b), (c) の配置によって生成される垂直偏光の最大直線偏光度を比較するために、式(3)の条件を満たしつつ4枚の移相子結晶を回転させて、X線の残留水平偏光成分をSSDによってカウントした。この際、(a)と(b)の場合では、4枚すべての結晶をブラッグ条件の低角側から高角側へと回転させたが、(c)の場合は、PR₂とPR₄を低角側から高角側へ、PR₁とPR₃をその逆に回転させた。これは、四象限配置においては、式(1)と式(2)によって記述されるように、移相シフトの符号の逆転が起こることによる。測定した $\Delta\theta_4$ の角度範囲と間隔、および測定時間を Table 1 にまとめてある。

3.2 実験結果

Figs. 6(a), 6(b), 6(c)は、それぞれ Figs. 5(a), 5(b), 5(c)に対応する実験結果である。横軸は $\Delta\theta_4$ である。任意スケールでプロットされた右の縦軸は、4枚の移相子からの反射X線強度である。対数スケールでプロットされた左の縦軸は、 $I_v/(I_v+I_h)$ である。ここで、 I_v と I_h は、検光子に入射するX線の垂直偏光成分と水平偏光成分の強度である。 $I_v/(I_v+I_h)$ の値は、われわれの以前の論文に記述した手法³⁶⁾によって、IC₂とSSDにより測定されるX線強度から計算された。この際、 $\Delta\theta_4 = -900$ arcsecにおける $I_v/(I_v+I_h)$ の値を動力学的回折理論による計算に基づいて0.975であると仮定している。垂直偏光の直線偏光度 P_v は、次のように定義され、計算することができる。

$$P_v = \frac{I_v - I_h}{I_v + I_h} = 1 - \frac{2I_h}{I_v + I_h}. \quad (4)$$

Figs. 6(a), 6(b), 6(c)で、 $\Delta\theta_4 \approx \pm 60$ arcsecにおいて、近似的に垂直偏光が生成されたことを示す鋭い谷（ディップ）が観察される。Fig. 6の左と右のディップにおける垂直偏光の最大直線偏光度 $P_v^{(Left.Max)}$ と $P_v^{(Right.Max)}$ は、式(4)を用いて計算することができる。(a), (b), (c)の場合における $P_v^{(Left.Max)}$ の値は、それぞれ、0.889, 0.958,

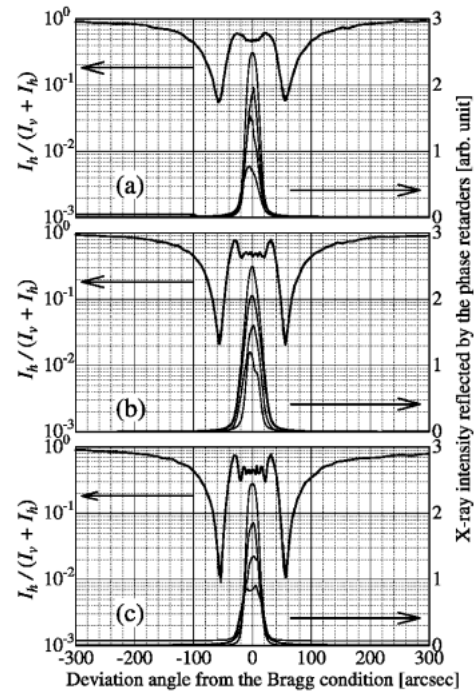


Figure 6. Rate of residual horizontal-polarized component of X-rays whose polarization state was converted from the horizontal polarization by quadruple phase retarder system. (a), (b) and (c) correspond to the geometries shown in Figs. 5(a), 5(b) and 5(c)⁴⁷⁾.

0.982であった。(a), (b), (c)の場合における $P_v^{(Right.Max)}$ の値は、それぞれ、0.880, 0.958, 0.979であった。二象限移相子においては、光軸収差補償効果により、一象限移相子よりも均一な位相シフトが与えられており、また、四象限移相子においては、光軸収差と色収差の両方の補償効果により、一象限および二象限移相子よりも均一な位相シフトが与えられていることが明らかになった。(b)および(c)の場合においては、ブラッグ条件近傍で位相シフトが急激に変化することを示す振動プロファイルが見られる。そのような振動は、Fig. 6(a)の場合においては、ぼやけてしまっており、観察されない。振動プロファイルは、(b)における場合よりも、(c)において、より明瞭に観察される。この事実もまた、透過型移相子における位相シフト不均一が補償された効果の検証であるといえる。

BL-4Aは、Photon Factoryにおいて最も発光点からの距離が短い実験ステーションの一つであるため、四象限移相子による垂直偏光の最大直線偏光度0.98という見積もりは、最も厳しい評価である。われわれは、Photon FactoryのBL-15Cを用いて、垂直偏光の最大直線偏光度としてさらに高い値を得ている。Fig. 7(a)は、BL-15Cで行った実験結果であり、BL-4Aで行った実験結果、Fig. 6(c)に対応する。垂直偏光の最大直線偏光度は、0.994に達している。これは、X線の水平方向の角度発散25 arcsec、エネルギー広がり0.5 eVの条件での評価である。Fig. 7(b)は、やはりBL-15Cで行った実験結果であるが、検光

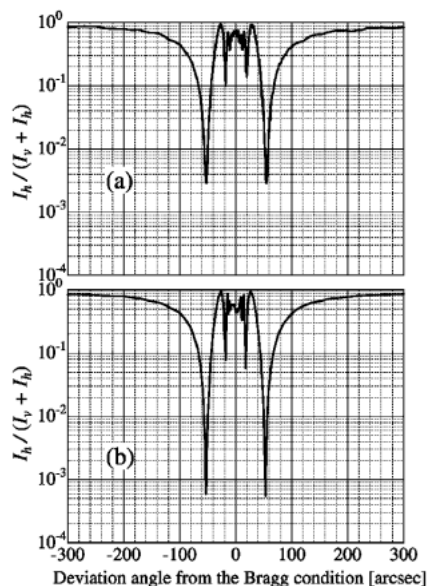


Figure 7. Rate of residual horizontal-polarized component of X-rays whose polarization state was converted from the horizontal polarization by the four-quadrant phase retarder system measured at station BL-15C of the Photon Factory whose distance from radiation source is farther than station BL-4A⁴⁷⁾. (a) corresponds to Fig. 6(c) measured at BL-4A and then to the geometry shown in Fig. 5(c). (b) was measured with a (+-+-, -+-+) geometry of parallel nicol polarizer and analyzer in which energy spread of X-rays was suppressed into 0.05 eV.

子結晶の配置が、Fig. 5(c)と異なっており、平行ニコルではあるが、偏光子と検光子が(+ - + -, - + - +)配置を構成するように、すなわち検光子結晶がX線をはね上げるようにセットされている。この場合、検光子でブラッグ反射されるX線のエネルギー広がり、0.05 eV程度の小さな値であると見積もられる。Fig. 7(b)の場合、垂直偏光の最大直線偏光度は、0.999に達している。Fig. 7(a)とFig. 7(b)の結果は、四象限X線移相子においても、入射X線の角度発散を小さくし、エネルギー広がりを小さくすることが、より高い完全偏光度のX線を得るために有効であることを示している。これは、四象限移相子においては、位相シフト勾配、すなわち位相シフトの1次微分が補償されているが、2次以上の微分による位相シフト不均一は残っていることによる。

4. 四象限X線移相子のその他のメリット

単色化された元の直線偏光に対して透過型移相子によって偏光状態の変換を行うという方法自体、下流の分光器結晶(モノクロメーター)によって偏光状態が乱されることがないというメリットを持っている。結晶によってブラッグ反射を受けた反射波は、ブラッグ条件の角度領域近傍で σ 偏光と π 偏光の位相差が激しく変化するため、偏光状態が乱れてしまうと考えられる。このことは、反射型X線移相子が実用的でなかった理由でもある。

また、われわれは、四象限移相子を用いた直線偏光スイ

ッチング法により六方晶コバルト結晶における直線二色性を測定することに成功している。この方法では、垂直偏光と水平偏光を1秒程度で切り替えることができる。得られる垂直偏光と水平偏光の最大直線偏光度は、それぞれ、0.98と0.9999に達している。水平直線偏光は、第一象限と第三象限移相子によって与えられた位相シフトを第二象限と第四象限移相子によって与えられる位相シフトで打ち消して、位相シフトゼロの条件を作り出すことによって生成している。これは一見無駄のようであるが、このことによって、移相子のわずかな回転のみで、高い直線偏光度の水平偏光を生成できる。1枚の移相子を光路から取り去ることなく水平偏光を得ようとする場合、移相子を回転させてブラッグ条件から大きくはずし、かつ、水平に細長い楕円偏光で妥協することになる。直線偏光度の高い垂直偏光と水平偏光を迅速にスイッチングできることも、また、四象限移相子のメリットなのである。

さらに、収差補償型移相子は、高いエネルギー領域で特に有利である。1枚の移相子は、厚いほどブラッグ条件から離れた角度で使えるので、厚い結晶を使う方が光軸収差と色収差の影響が小さいのであるが、市販品の高純度人工ダイヤモンド結晶の厚さは、2 mm程度が技術的限度である。2 mm厚の結晶を4枚重ねれば、実効的な厚さはおよそ8 mmとなり、高エネルギー領域でのX線偏光制御では、収差補償型二象限および四象限X線移相子が非常に有利になると考えられる。光子エネルギーが高いほどダイヤモンドに対する吸収係数が小さくなるので、高エネルギー領域では、厚い結晶を使えることとなり、また同時に残留収差を小さくする観点からも厚い結晶が必要なのである。シリコン結晶は完全度が極めて高いが、吸収係数がダイヤモンドのおよそ10倍あり、移相子用結晶としてはスループットが非常に低くなることが判っている。

5. まとめ

光軸収差と色収差を補償する四象限X線移相子を開発し、その収差補償効果を検証する実験を行った。Photon FactoryのBL-4Aにおいて水平偏光から変換された垂直偏光の最大直線偏光度を評価したところ、一象限配置(1枚の移相子に相当)では、0.89程度であったのに対して、4象限移相子では、0.98に達した。BL-4AはPhoton Factoryにおいて、最も発光点からの距離が短い実験ステーションであるため、上の評価は収差に対する条件が最も厳しいものである。BL-15Cにおいて得られた垂直偏光の最大直線偏光度は、エネルギー広がり0.5 eVの条件で0.994、0.05 eVの条件で0.999に達した。水平偏光から垂直偏光への変換は、移相子に対して最も大きな位相シフトを要求することになり、収差に対する条件もまた最も厳しい。円偏光を得ようとした場合、さらに高い完全偏光度が得られると予想される。近年盛んになってきているX線の偏光を応用した物性研究に対して、四象限X線移相子は、あ

らゆる偏光状態を生成する光学素子として、一般的な手法を提供するものと期待される。

謝辞

本研究は、Photon Factory Program Advisory Committeeの許可を得て行われた(Proposal No. 97G-179, 99S2-003)。また、4枚のダイヤモンド移相子結晶の調整は、東京大学工学部の強力X線実験室において行われた。本研究をご理解頂き、本稿の執筆を薦めてくださった平野馨一博士に感謝致します。

参考文献

- 1) G. Moliere: *Ann. Phys.* **35**, 297 (1939).
- 2) P. Skalicky and C. Malgrange: *Acta Crystallogr.* **A28**, 501 (1972).
- 3) M. Hart: *Philos. Mag.* **B38**, 41 (1978).
- 4) S. Annaka, T. Suzuki and K. Onoue: *Acta Crystallogr.* **A36**, 151 (1980).
- 5) S. Annaka: *J. Phys. Soc. Jpn.* **51**, 1927 (1982).
- 6) J. A. Golovchenko, B. M. Kincaid, R. A. Lvesque, A. E. Meixner and D. R. Kaplan: *Phys. Rev. Lett.* **57**, 202 (1986).
- 7) D. M. Mills: *Phys. Rev. B* **36**, 6178 (1987).
- 8) M. Hart and A. R. D. Rodrigues: *Phylos. Mag.* **B40**, 149 (1979).
- 9) D. H. Templeton and L. K. Templeton: *Acta Crystallogr.* **A36**, 237 (1980).
- 10) C. Brouder: *J. Phys. Condens. Matter.* **2**, 701 (1990).
- 11) V. E. Dmitrienko: *Acta Crystallogr.* **A39**, 29 (1983).
- 12) E. Tsuji, T. Kurasawa, I. Yazawa, H. Katoh, N. Momozawa, K. Ishida and S. Kishimoto: *J. Phys. Soc. Jpn.* **65**, 610 (1996).
- 13) T. Nagano, J. Kokubun, I. Yazawa, T. Kurasawa, M. Kuribayashi, E. Tsuji, K. Ishida, S. Sasaki, T. Mori, S. Kishimoto and Y. Murakami: *J. Phys. Soc. Jpn.* **65**, 3060 (1996).
- 14) 石田興太郎: 日本結晶学会誌 **39**, 54 (1997).
- 15) 村上洋一, 川田 肇, 田中雅彦, 小山一郎, 河田 洋, 有馬孝尚, 守 友浩, 十倉好紀: 日本放射光学会誌 **11**, 30 (1998).
- 16) Y. Murakami, H. Kawada, H. Kawata, M. Tanaka, T. Arima, Y. Moritomo and Y. Tokura: *Phys. Rev. Lett.* **80**, 1932 (1998).
- 17) G. Schütz, W. Wagner, W. Wilhelm, P. Kienle, R. Zeller, R. Frahm and G. Materik: *Phys. Rev. Lett.* **58**, 737 (1987).
- 18) D. P. Siddons, M. Hart, Y. Amemiya and J. B. Hastings: *Phys. Rev. Lett.* **64**, 1967 (1990).
- 19) M. Hart, D. P. Siddons Y. Amemiya and V. Stojanoff: *Rev. Sci. Instrum.* **62**, 2540 (1991).
- 20) S. Yamamoto and H. Kitamura: *Jpn. J. Appl. Phys.* **26**, L1613 (1987).
- 21) H. Maruyama, T. Iwazumi, H. Kawata, A. Koizumi, M. Fujita, H. Sakurai, F. Itoh, K. Namikawa and H. Yamazaki: *J. Phys. Soc. Jpn.* **11**, 4099 (1991).
- 22) K. Namikawa, M. Ando, T. Nakajima and H. Kawata: *J. Phys. Soc. Jpn.* **11**, 4099 (1985).
- 23) K. Mori, K. Namikawa, Y. Koyama and M. Ando: *Jpn. J. Appl. Phys.* **32**, Suppl. 32-2, 323 (1993).
- 24) K. Mori, K. Namikawa, Y. Funahashi, Y. Higashi and M. Ando: *Rev. Sci. Instrum.* **64**, 1825 (1993).
- 25) H. Kawata, T. Iwazumi, N. Shiotani and F. Itoh: *Resonant Anomalous X-ray Scattering, Theory and Applications*, edited by G. Materik, C. J. Sparks and K. Fischer, (Elsevier Science, 1994) 557.
- 26) K. Hirano, K. Izumi, T. Ishikawa, S. Annaka and S. Kikuta: *Jpn. J. Appl. Phys.* **30**, L407 (1991).
- 27) T. Ishikawa, K. Hirano and S. Kikuta: *J. Appl. Crystallogr.* **24**, 982 (1991).
- 28) K. Hirano, T. Ishikawa, S. Koreeda, K. Fuchigami, K. Kanazaki and S. Kikuta: *Jpn. J. Appl. Phys.* **31**, L1209 (1992).
- 29) T. Ishikawa, K. Hirano and S. Kikuta: *Rev. Sci. Instrum.* **63**, 1098 (1992).
- 30) K. Hirano, T. Ishikawa and S. Kikuta: *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* **A336**, 343 (1993).
- 31) K. Hirano, T. Ishikawa and S. Kikuta: *Rev. Sci. Instrum.* **66**, 1604 (1995).
- 32) 平野馨一: 日本結晶学会誌 **38**, 221 (1996).
- 33) C. Giles, C. Margrange, J. Goulon, F. Bergevin and C. Vettier: *J. Appl. Cryst.* **27**, 232 (1994).
- 34) K. Hirano and H. Maruyama: *Jpn. J. Appl. Phys.* **36**, L1272 (1997).
- 35) M. Suzuki, N. Kawamura, M. Mizumaki, A. Urata, H. Maruyama, S. Goto and T. Ishikawa: *Jpn. J. Appl. Phys.* **37**, L1488 (1998).
- 36) K. Okitsu, Y. Ueji, K. Sato and Y. Amemiya: *J. Synchrotron Rad.* **8**, 33 (2001).
- 37) 上工地義徳, 沖津康平, 佐藤公法, 雨宮慶幸: 放射光 **13**, 48 (2000).
- 38) J. Goulon, C. Goulon-Ginet, A. Rogalev, V. Gotte, C. Malgrange, C. Brouder and C. R. Natoli: *J. Chem. Phys.* **108**, 6394 (1998).
- 39) L. Alagna, T. Prosperi, S. Turchini, J. Goulon, A. Rogalev, C. Goulon-Ginet, C. R. Natoli, R. D. Peacock and B. Stewart: *Phys. Rev. Lett.* **80**, 4799 (1998).
- 40) 佐藤公法, 上工地義徳, 沖津康平, 長谷川祐司, 松下正, 雨宮慶幸: 放射光 **13**, 304 (2000).
- 41) K. Sato, K. Okitsu, Y. Ueji, T. Matsushita and Y. Amemiya: *J. Synchrotron Rad.* **7**, 368 (2000).
- 42) 佐藤公法, 上工地義徳, 沖津康平, 雨宮慶幸: 材料科学 **38**, 18 (2001).
- 43) K. Sato, Y. Ueji, K. Okitsu, T. Matsushita and Y. Amemiya: *J. Synchrotron Rad.* **8**, 1021 (2001).
- 44) K. Sato, Y. Ueji, K. Okitsu, T. Matsushita, J. Saito, T. Takayama and Y. Amemiya: *J. Magn. Soc. Jpn.* **25**, 206 (2001).
- 45) K. Sato, Y. Ueji, K. Okitsu, T. Matsushita, J. Saito, T. Takayama and Y. Amemiya: *Phys. Rev. B* **65**, 134408 (2002).
- 46) K. Sato, Y. Ueji, K. Okitsu, T. Matsushita, J. Saito, T. Takayama and Y. Amemiya: *J. Magn. Soc. Jpn.* **26**, 238 (2002).
- 47) K. Okitsu, Y. Ueji, K. Sato and Y. Amemiya: *Acta Cryst.* **A58**, 146 (2002).



沖津康平*

東京大学工学部総合研究機構

〒113-8656

東京都文京区弥生 2-11-16

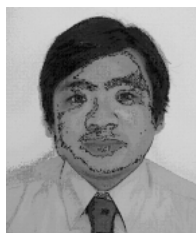
E-mail: okitsu@soyak.t.u-tokyo.ac.jp

専門: X線光学, X線回折理論, 回折結晶学

略歴:

1983年3月 京都大学工学部金属加工学科卒業

- 1989年3月 富山大学理学部物理学専攻修士課程修了
 1993年10月 高エネルギー物理学研究所協力研究員
 1995年10月 新技術事業団(現科学技術振興事業団)科学技術特別研究員
 1997年3月 総合研究大学院大学放射光科学専攻修了博士(工学)
 1998年5月 東京大学工学部総合試験所 助手



上工 地義徳

東京大学大学院新領域創成科学研究科
物質系専攻

〒277-8561

千葉県柏市柏の葉 5-1-5

基盤研究棟601

E-mail : ueji@k.u-tokyo.ac.jp

専門 : X線光学, 回折結晶学, 物性物理学

略歴 :

- 1994年3月 金沢大学理学部物理学科卒業
 1996年3月 金沢大学大学院理学研究科物理学専攻修士課程修了
 1999年3月 総合研究大学院大学数物科学研究科放射光科学専攻修了 博士(理学)
 1999年4月 高エネルギー加速器研究機構 協力研究員
 1999年6月 東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻助手
 2002年8月 東京大学大学院 新領域創成科学研究科 物質系専攻 助手

佐藤 公法

産業技術総合研究所

〒305-8565 茨城県つくば市東 1-1-1

産業技術総合研究所 つくば中央第5事業所

計測標準研究部門 材料分析研究室

E-mail : sato-k@aist.go.jp

専門 : X線光学, 陽電子消滅

略歴 :

- 1996年3月 東京学芸大学教育学部 卒業
 1998年3月 東京学芸大学教育学研究科 理科教育専攻修士課程修了
 2001年3月 東京大学工学系研究科 物理工学専攻博士課程修了 博士(工学)
 2001年4月 シュットガルト大学 非常勤研究員
 2002年7月 ワシントン州立大学 非常勤研究員
 2003年1月 産業技術総合研究所 非常勤研究員



雨宮 慶幸

東京大学大学院新領域創成科学研究科
物質系専攻

〒277-8561

柏市柏の葉 5-1-5 基盤棟601

東京大学大学院新領域創成科学研究科
物質系専攻

E-mail : amemiya@k.u-tokyo.ac.jp

専門 : X線計測学, X線小角散乱, 回折物理学

略歴 :

- 1974年3月 東京大学工学部物理工学科卒業
 1979年3月 東京大学工学系大学院物理工学専攻博士課程修了 工学博士
 1979年4月 日本学術振興会特定領域奨励研究員
 1982年4月 高エネルギー物理学研究所 助手
 1989年7月 高エネルギー物理学研究所 助教授
 1996年4月 東京大学大学院 助教授
 1998年4月 東京大学大学院 教授