

論文の内容の要旨

論文題目 ブラッグ角 90° における X 線動力的回折の研究とその応用

氏名 今井 康彦

近年の第 3 世代放射光施設では、従来に比べ電子 (陽電子) ビームのエミッタンスが小さくなるとともに、放射光の発散角も小さくなり、強度や輝度が格段に向上してきている。このようなコヒーレンスの高い第 3 世代放射光 X 線を用いることにより、近い将来における硬 X 線領域での Fabry-Perot 型干渉計 (FP 干渉計) が期待されている。硬 X 線領域における FP 干渉計が利用できるようになると、これを用いた高分解能の分光や、高精度の格子定数測定、各種の干渉実験への応用などが考えられる。更に、現在研究が進められている自由電子レーザーと同様の原理で、アンジュレーター と反射ミラーを組み合わせた方法による X 線のレーザー発振も考えられる。

X 線領域において FP 干渉計を構成するには、可視光の場合に用いられるミラーの代わりに、結晶などによるブラッグ角 90° の回折を用いる必要がある。ブラッグ角 90° の回折は、回折における特異点にあたり、完全に近い結晶による動力的回折では、次のような特徴が知られている。

- 回折の角度幅が数 100 arcsec と通常の回折の 1000 倍程度に広がる。
- 回折に関わる X 線のエネルギーバンド幅が 数 meV と非常に狭くなる。

この特徴的な回折現象は 1972 年に Kohra, Matsushita により初めて動力的回折理論による説明がなされ、主に理論の面から研究されてきた。しかし近年では、放射光の利用環境が充実してきたため、理論だけでなく実験の面からも、研究の対象として注目されてきている。また応用として、X 線定在波法による表面構造解析や、 90° 近傍のブラッグ角をとる回折を用いた高エネルギー分解能の分光などに用いられている。

硬 X 線領域での FP 干渉計は 1979 年に A.Steyerl らによって提案されたが、未だ実現には至っていない。干渉計の開発が困難で、干渉が未だ観測されていない原因はいくつか考えられる。本研究ではこれらを明らかにするとともに、硬 X 線領域における FP 干渉計実現のための第 1 歩として、

ブラッグ角 90° における X 線動力的回折の特徴を理論および実験の両面から詳しく調べ、応用の可能性を探ることを目的としている。

X 線のモザイク結晶による回折は、X 線が結晶中で 1 回だけ散乱を受けるとして扱った運動学的回折理論によって説明される。一方、完全性の高い結晶による回折の場合には、X 線が結晶中で複数回の散乱をうけるため、多重散乱を考慮した動力的回折理論を用いる必要がある。動力的回折理論には幾つかの流儀があり、Laue 流と Darwin 流の理論の 2 つに大別される。

Laue 流の理論では、結晶を周期的な誘電率の場とみなし、Maxwell の波動方程式を解くことにより、結晶中に存在する波動場を求めている。一般に Laue 流の動力的回折理論では、k 空間における等エネルギー面 (分散面) を考える際に、分散面の線形近似を行う。ところが、ブラッグ角が 90° の近傍では、この線形近似が破綻するため、通常とは異なる特別な取扱が必要となる。ブラッグ角が 90° の近傍における動力的回折を扱うことが出来るように工夫された理論は、k 空間座標を元にした解析的な方法である Kohra, Matsushita の理論をはじめとしていくつか示されている。また、k 空間における幾何学的な手法をとる理論も報告されている。

一方、Darwin 流の理論では、まず結晶を周期的な原子層の堆積とみなし、1 原子層による X 線電場の振幅透過率と振幅反射率を基に、原子層間における電場振幅の関係を漸化式として求める。次に、この漸化式を境界条件のもとで解くことにより、透過波と回折波を導き出すという方法をとる。Darwin 流の理論は Laue 流の理論に比べ、物理的な猫像が単純で直観的にも分かりやすく、結晶表面に平行な 1 種類の格子面による回折 (2 波回折) に関する限り十分な一般性を持っている。また、ブラッグ角が 90° 近傍という条件下でも特別な取扱を必要としない。また、結晶表面と平行でない格子面による回折 (非対称反射) や、回折に関わる格子面が 2 つあり、回折波が全て同一平面内にある coplaner な 3 波の多波回折を扱うことができるように拡張された理論も示されている。最近では、結晶の表面構造解析の分野において、Darwin 流の理論の有効性が再評価されている。本研究における理論計算には、Darwin 流の理論を用いている。

X 線のブラッグ角 90° における回折波を観測するには、いくつかの条件と X 線光学の高度な実験技術が必要となる。第 1 に、ブラッグ角を 90° と固定するため、格子面間隔もしくは波長のいずれか一方を決めると、他方が一意に決まってしまう。これは、光源として X 線管からの特性 X 線を用いる場合、回折格子面をうまく選ぶ必要があるということを示している。しかし、光源として連続スペクトルである放射光 X 線を用いる場合には、得られる波長域の中で自由な格子面の選択が可能となる。

第 2 に、ブラッグ角 90° における回折の透過波を観測するためには、高分解能のモノクロメータが必要となる。何故なら、ブラッグ角 90° の回折に関わる X 線のエネルギー幅 ΔE は非常に小さいため、これと同程度に分光した X 線を用いなければ、回折に与らない透過 X 線がノイズとなり S/N が低下するためである。更に、モノクロメータに要求されるエネルギー分解能が $\Delta E/E \sim 10^{-7}$ と非常に高いため、モノクロメータ自身のエネルギー分解能の評価も必要である。これにはエネルギーバンド幅が更に狭い核共鳴散乱 ($10^{-8} \sim 10^{-6} \text{eV}$) を利用する以外に良い方法はない。ここで核共鳴散乱の波長は核種と共鳴準位によって決まっており、核共鳴散乱を利用した実験では、それぞれ高分解能のモノクロメータが開発されている。このモノクロメータをブラッグ角 90° の回折の実験に利用できれば、モノクロメータのエネルギー分解能の評価も可能となる。また、高分解能のモノクロメータがビームラインに常設されている場合には、時間の限られた放射光利用実験を有効に進めることができる。

第 3 に、対称性のよい結晶によるブラッグ角 90° の回折では、低次の格子面による回折を除いて、複数の格子面が回折条件を満たしてしまい、同時反射が避けられない。低次の格子面によるブ

ブラッグ角 90° では用いる波長が 3.8\AA 以上と長くなり、空気中での実験には適当でない。また、同時反射面が多くなると、ブラッグ角 90° の回折の強度が小さくなり、また解析も複雑になるため、なるべく同時反射面が少ない格子面を選択することが望ましい。

以上のことから、核共鳴散乱の内もっとも広く用いられている ^{57}Fe からの核共鳴散乱線 ($\lambda = 0.86023\text{\AA}$) 用のモノクロメータを利用することが最適であると考えた。回折格子面としては、現在入手できる完全性の高いシリコン単結晶の Si (991) および、水晶 ($0\ 6\ \bar{6}\ 10$) を用いることにした。Si (991) によるブラッグ角 90° の回折では、同時反射面が 4 つと、低次の格子面を除けば、同時反射面の数が少ない格子面の 1 つである。また、Si(991) による回折でブラッグ角が 90° となる波長は ^{57}Fe からの核共鳴散乱用のモノクロメータを調整することで出力可能である。水晶 ($0\ 6\ \bar{6}\ 10$) では、結晶の温度を $80\text{ }^\circ\text{C}$ 程度に上げることにより、 ^{57}Fe からの核共鳴散乱線を用いてブラッグ角 90° の回折をおこなうことができる。 ^{57}Fe からの核共鳴散乱のエネルギーバンド幅は非常に狭い (自然幅 $\Gamma = 4.7 \times 10^{-9}\text{eV}$) ため、核共鳴散乱の成分 (時間遅れ成分) だけを測定することにより、ブラッグ角 90° の回折の intrinsic なエネルギースペクトルの測定が可能となる。以下に実験結果について簡単に述べていく。

はじめに、薄いシリコン結晶の平板 Si(991) を用いて、ブラッグ角 90° における回折の反射波と透過波について、そのエネルギー依存性、角度依存性を調べる実験を行った。これまでは、厚い結晶からの反射波を使った実験のみで、透過波を使った実験は報告されていない。将来の FP 干渉計への応用を考えると、透過方向の回折波の特性についても調べる必要であると考えた。実験は、KEK PF BL15C にて行った。 $226\ \mu\text{m}$ の厚さの試料について測定した結果を図 1 に示す。回折の角度幅と、反射率、透過率の絶対値とも理論とよく一致することが確認された。反射率の測定結果の中心に見られる急なディップは同時反射の影響であると考えられる。

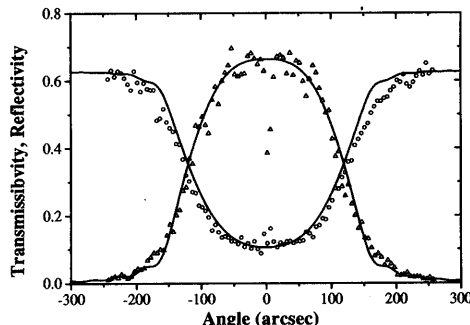


図 1: 反射率および透過率のロッキングカーブの測定値と理論値.

次に、X線干渉計による位相変化に敏感な測定システムを用いて、ブラッグ角 90° における透過方向の回折波の位相変化を測定した。この測定システムは、LLL 型 X線干渉計内の片方のパスに回折を起こす試料を配置することにより、回折透過波の位相変化を直接測定することができる。光学系を図 2 に示す。FP 干渉計への応用を考えた場合、干渉に大きく関わるのは位相であるため、回折波の位相変化特性を調べることは大きな意味がある。実験は Si(991) 単平板を試料として、KEK PF-AR NE3 および SPring-8 BL09XU において行った。透過波の位相変化について、測定結果と 2 波近似による理論計算結果を図 3 に示す。ブラッグ角 90° からのずれが $\pm \sim 50\text{arcsec}$ 以下の領域では同時反射の影響のため理論と一致していないが、その外の領域では理論とほぼ一致するという結果が得られた。これは、ブラッグ角が $90^\circ \pm \text{数 arcsec}$ という条件では同時反射が透過波の

位相に与える影響を無視できず、同時反射を考慮した厳密な取り扱いが必要であることを示している。本研究では同時反射を考慮した理論の構築を試みている。更に、同時反射を用いた位相問題の解決に、ブラッグ角 90° の回折を応用できないか、という検討も行った。

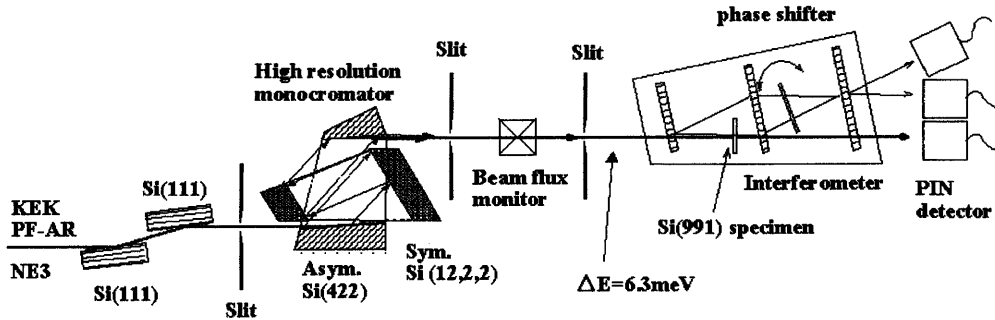


図 2: 水晶 $(0\ 6\ \bar{6}\ 10)$ からのブラッグ角 90° の回折波のエネルギースペクトル測定結果。

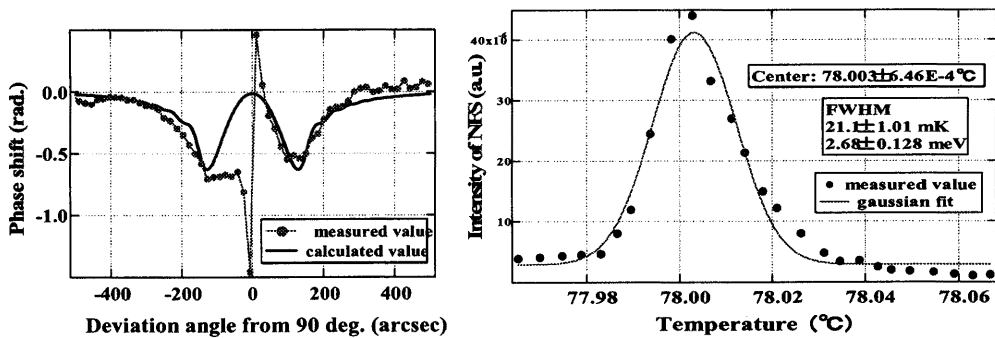


図 3: 位相変化の角度依存性。

図 4: 水晶 $(06\bar{6}10)$ のブラッグ角 90° の回折のエネルギースペクトル。

更に、 ^{57}Fe からの核共鳴散乱線を用いて、 80°C 程度において温度を精密に制御した水晶 $(0\ 6\ \bar{6}\ 10)$ によるブラッグ角 90° の回折波のエネルギースペクトルの測定を行った。試料は恒温炉の中に配置し、炉の温度は PC により PID 制御し、相対精度は 1mK 以下を確認している。温度を上げると、結晶の格子面間隔が広がり、相対的に波長が短く、すなわちエネルギーが高くなることに相当する ($10\text{mK} \sim 1.26\text{meV}$)。結晶の温度を変化させることにより測定したエネルギースペクトルを図 4 に示す。Gaussian フィットによる半値幅は 2.6meV となり、2 波近似の理論から得られる半値幅 3.6meV より狭いという結果が得られた。2 波での理論より良いエネルギー分解能が得られたということは、同時反射と回り込み (Umweganregung) 反射の影響と考えられる。

本研究では、これらの実験を通してブラッグ角 90° の回折に関する実験技術を構築し、実験結果へ理論的考察を加え、将来の FP 干渉計実現へ向けた下地を築いたといえる。将来の展望としては、結晶表面への積層技術を用いたサンドイッチ構造の一体型 FP 干渉計や、可干渉距離の長い核共鳴散乱線を用いた一体型の Michelson 干渉計などが考えられる。更に、超高精度の角度制御技術を用いた、分離型の FP 干渉計も考えられる。