

# 収差補償型 X 線移相子を用いた X 線偏光イメージングの現状と X 線偏光干渉イメージングに向けての展望

The present status of X-ray polarization imaging using aberration compensating X-ray phase retarder system and perspective for X-ray ‘polarization interference’ imaging

沖津 康平

Kouhei OKITSU

東京大学工学部附属総合試験所

Engineering Research Institute, Univ. of Tokyo

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

X-ray natural linear dichroism (XNLD), magnetic circular dichroism (XMCD) and magnetic linear dichroism (XMLD) imagings are recently performed by using linear and circular polarization switching techniques with two-quadrant X-ray phase retarder system which compensate for off-axis aberration (phase-shift inhomogeneity depending on angular divergence of incident X-rays). XMCD imaging results are introduced in the present article. Also four-quadrant phase retarder system which can compensate for both off-axis and chromatic aberrations (phase-shift inhomogeneity depending on photon-energy dispersion of incident X-rays) recently developed is introduced. While there are three ways for dividing waves in interferometric measurement using magneto-optical waves, that is, (1) division of amplitude, (2) division of wavefront and (3) division into polarized beams, only (1) division of amplitude used in the Bonse-Hart interferometer is recognized to be a unique way for dividing waves in X-ray range. It is described, however, in the present article that (3) division into polarized beams is another effective candidate for X-ray interferometric measurement including imaging techniques.

## 1. はじめに

1970 年代に放射光が登場して以来、従来のラボソースの X 線にはない、いくつかの特色により、X 線計測には大きな進歩が放射光によってもたらされた。その特色とは、(1) 高輝度および大強度、(2) 連続スペクトルを持つこと、(3) 多くの放射光 X 線源が水平偏光のビームを放射すること、(4) パルス X 線が得られること、のほぼ 4 つであると言っている。(1) の高輝度および大強度の特色と (2) の連続スペクトルの特色は比較的わかりやすく、放射光ユーザーは殆ど例外なく、これらの恩恵を受けることができる。(4) のパルス特性は、非常に高速に応答する X 線検出器の開発と相俟って、核共鳴散乱実験などに成果を上げつつある。ユーザーにとってわかりにくいのが (3) の偏光特性であ

る。X 線磁気円二色性 (X-ray Magnetic Circular Dichroism; XMCD) スペクトルは、1987 年の Schütz らの報告[1]以来、磁性研究の手段として、世界的な大潮流となっている。この仕事[1]では、シンクロトロンを周回する電子の軌道面の上下で、放射光 (off-axis 光) が円偏光成分を持ち、そのヘリシティが上下で逆転することを利用して XMCD スペクトル測定が行われた。Schütz らの方法は画期的ではあったが、軌道面上に放射される放射光と比較して、off-axis 光がきわめて弱く、また円偏光度も低いという欠点があった。XMCD の測定技術は、その後次第に進化してゆく。off-axis 光の次に XMCD 測定に利用されたのは、円偏光の偏光状態を生成するアンジュレーターからのビームであった[2]。これは off-axis 光と比較して非常に強いと

いうメリットがあった。しかし分光器結晶で反射される際に偏光状態が著しく乱れてしまうという欠点があった。今日広く行われ、かつ普及しつつあるのが、平野、石川、菊田らによって開発された透過型X線移相子[3-5]を用いる方法[6,7]である。この方法は、水平偏光の放射光を移相子によって円偏光に変換するもので、後置光学系による偏光状態の解消がないため、最も高い円偏光度が得られる。

X線移相子には、平野ら以前も研究例があった。結晶にブラッグ反射されたX線の偏光特性を利用する反射型X線移相子である[8-12]。

X線移相子はいずれも $\sigma$ 偏光X線と $\pi$ 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。このことにより、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った。

## 2. 収差補償型X線移相子

それでもなお、透過型X線移相子には、入射X線の角度発散により位相シフト量の不均一が生じるという問題（光軸収差）があり、このため、入射X線の角度発散を絞って使うべきだとされていた[4]。この問題に解決を与えたのが、筆者らが考案した二象限X線移相子である[13]。

Fig. 1は、光軸収差を補償する二象限X線移相子の原理を示している。Fig. 1 上部の単位ベクトル  $e_x$ ,  $e_y$ ,  $e_z$  は、直交座標系を構成する。入射X線は直線偏光であり振動方向は、 $e_x + e_y$  である。よって図が描かれている平面は、入射X線の偏光方向に対して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 Bragg 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

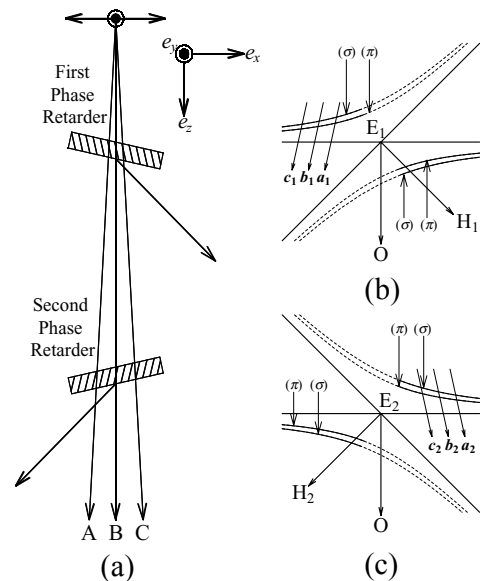


Fig. 1 Principle of the two-quadrant phase retarder system.

る。Cの光路については、その逆となる。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。 $\pi$ 偏光に対する分散面は、 $\sigma$ 偏光に対する分散面より内側にあり、それらの分散面の漸近線からの距離の比は  $\cos(2\theta_B)$  である。 $\theta_B$  は、移相子結晶の Bragg 角である。動力学理論によれば、ラウエケースの場合、Bragg 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 ( $\sigma$ 偏光と $\pi$ 偏光に対して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 Bragg 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 Bragg 条件より高角で働くとき、透過波の $\sigma$ 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、ともに $\sigma$ 偏光の位相を遅らせ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  $a_1$ ,  $b_1$ ,

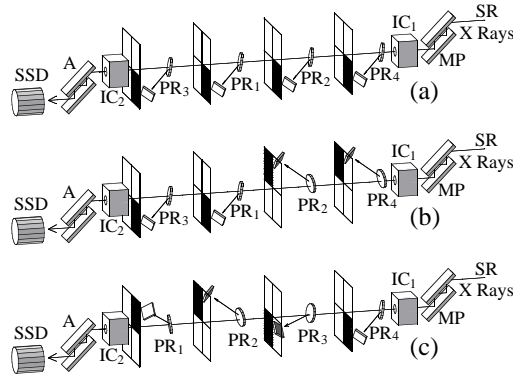


Fig. 2 Experimental setup of (a) one-quadrant, (b) two-quadrant and (c) four-quadrant X-ray phase retarders.

$c_1$  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。 $a_1, b_1, c_1$  と  $a_2, b_2, c_2$  は, 第1および第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 Bragg 条件からのズレにより決定される。ここで $\sigma$ 偏光と $\pi$ 偏光の透過波に対する波数ベクトルの差 $\Delta k_o$ を導入し, ベクトル  $a_1$  によって与えられる位相差 $\Delta k_o$ を $\Delta k_o(a_1)$ のように表すとする。Fig. 1 (b)から,  $|\Delta k_o(a_1)| > |\Delta k_o(b_1)| > |\Delta k_o(c_1)|$  であることがわかるが, Fig. 1 (c)では,  $|\Delta k_o(a_2)| < |\Delta k_o(b_2)| < |\Delta k_o(c_2)|$  となっている。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。

透過型X線移相子には, 光軸収差だけではなく, 色収差(入射X線の波長広がりによる位相シフト不均一)も存在する。Fig. 2(c)は, 四象限X線移相子の配置図を示している。紙数の関係上, 原理を詳述できないが, 奇数象限と偶数象限への反射

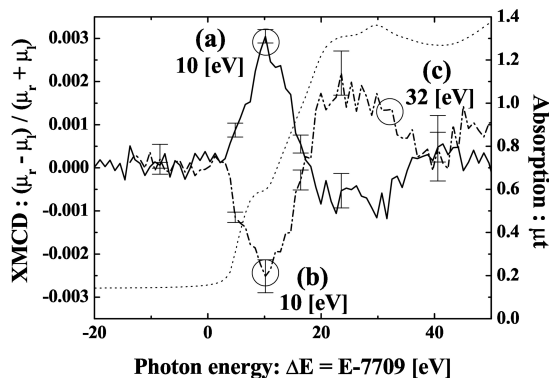


Fig. 3 XMCD spectra of polycrystalline cobalt foil obtained using circular polarization switching technique with two-quadrant phase retarders.

を与える移相子の色収差の逆転のため, 光軸収差と色収差の両方が補償できる[14,15]。Fig. 2 (a), (b), (c) は, 4枚の移相子を, 一象限, 二象限, 四象限配置にした実験配置図であるが, 水平偏光から変換された垂直偏光度を評価したところ, それぞれ, 89%, 96%, 98% となり, 四象限X線移相子の有用性が確認されている。この評価は, Photon Factoryで光源からの距離が近く, X線の角度発散, エネルギー広がり, 最も大きいPF BL4Aにおいて行われており, 最も悲観的な数値である。現在までに得られている最大垂直偏光度は, PF BL15Cでは, 99.9%に達している[15]。

### 3. 収差補償型X線移相子によるイメージング

収差補償型移相子はすでにそのアプリケーションが開始されており, X線自然直線二色性(XNLD)[16,17], X線自然円二色性(XNCD)[18], X線磁気円二色性(XMCD)[17,19,20], X線磁気直線二色性(XMLD)[21]のスペクトル測定やイメージングが行われている。これらのアプリケーションの中から, XMCDのスペクトルとイメージング[17,19,20]について紹介する。Fig. 3は, 二象限X線移相子を使った円偏光スイッチングの手法により測定された, 多結晶コバルト薄片試料のXMCDスペクトルである。薄片試料をビーム軸に対して斜め45度傾けて垂直にセットし, 磁場を薄片試料面に平行な水平方向に印加して, 円偏光のヘリシティをスイッチングしながら吸収係数の差分を測定した。実線と破線のスペクトルは, 磁場の印加方向を逆転させて得られたものである。つぎに, Fig. 4のように薄片を折り曲げて磁場を印加し, Fig. 3の(a), (b), (c)の部分で, 円偏光のヘリシテ

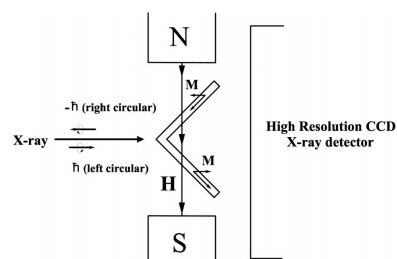


Fig. 4 Experimental arrangement of polycrystalline cobalt sample for obtaining XMCD contrast.

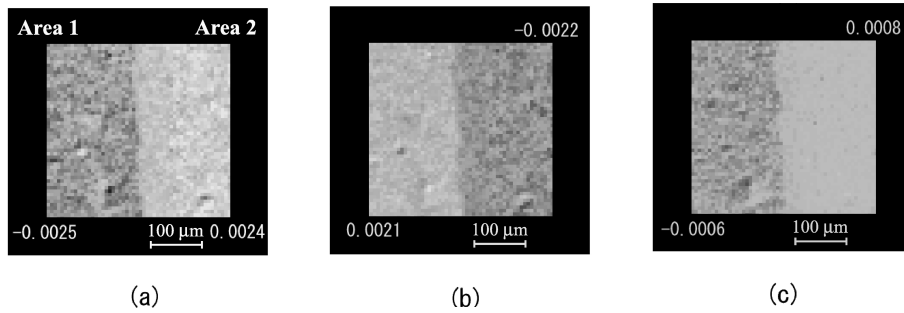


Fig. 5 XMCD images obtained after correction for thickness inhomogeneity of the sample. (a), (b) and (c) correspond to positions (a), (b) and (c) indicated in Fig. 3. XMCD contrasts are reversed due to change in sign of magnetic field applied to the sample between (a) and (b). Contrast reversal can also be observed owing to photon-energy position between (b) and (c) [17,19].

を反転することによる吸収率の差分をイメージングした結果が、Fig. 5 の (a), (b), (c) である。(a) と (b) では磁場の向き inverse により、(b) と (c) ではエネルギーの変化による XMCD 自体の符号の逆転により、コントラストが反転しているのがわかる。Fig. 5 は、サンプル厚の不均一による X 線強度のムラの効果を差し引いて、XMCD のみによるコントラストを計算機処理によって得ている。

#### 4. X線偏光位相コントラストイメージングへの展望

前節では、円偏光および直線偏光の二色性をイメージングする技術を紹介したが、複屈折に依存したコントラストを得ることも、試料後方に偏光アナライザーをセットすることで実現しそうであ

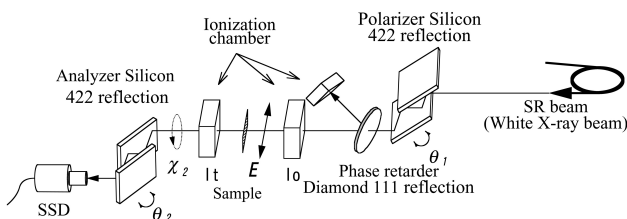


Fig. 6 Schematic drawing of energy-tunable X-ray polarimeter with a phase retarder

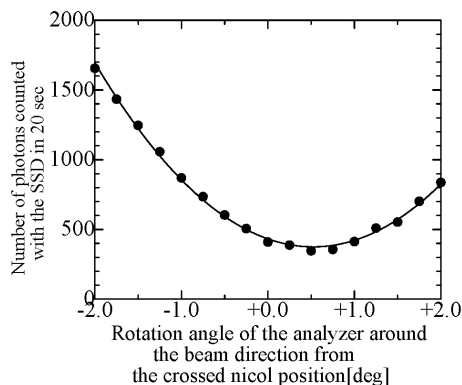


Fig. 7 X-ray intensity profile obtained by rotating the analyzer crystal.

る。Fig. 6 は移相子付き波長可変型 X 線ポリリメーター[22,23]の模式図を示している。シリコンチャンネルカットのオフセット機構[24]付き偏光子と検光子が、クロスニコルの状態から  $\pm 2$  度ビーム軸回りに回転させられるように設置されている。偏光子のすぐ下流には、直線偏光を楕円率  $\pm 0.02 \sim 0.04$  程の楕円偏光に変換するダイヤモンド結晶の透過型 X 線移相子がセットされている。移相子と検光子の間には、光学軸である  $c$ -軸が  $45$  度傾いた状態で、厚さおよそ  $12$  ミクロンのコバルト単結晶薄片試料が、セットされている。検光子を  $\pm 2$  度の範囲で回転させて検光子後方の SSD で検出された X 線強度をプロットしたのが、Fig. 7 である。ボトムを持ち上がりから、移相子とサンプル結晶がそれぞれ与える直線複屈折による楕円率の変化がわかり、ボトムの横方向のシフトから、試料結晶の直線二色性による偏光面回転角がわかる。Fig. 7 のようなスキャンを各エネルギーで行って、求められた回転角と楕円率変化のスペクトルが、それぞれ、Fig. 8 と Fig. 9 である。Fig. 9 の (a), (b), (c), (d) は、移相子によって生成される楕円偏光の楕円率が、それぞれ、 $-0.04, -0.02, +0.02, +0.04$  になるように移相子をコントロールして得られた偏光の楕円率のスペクトルである。ここで、楕円

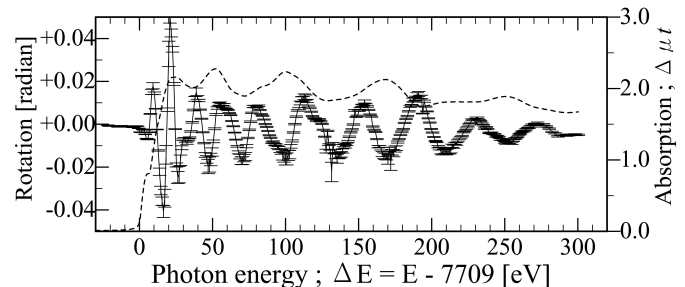


Fig. 8 Spectrum of rotation angle of polarization obtained with an *hcp* cobalt single crystal foil.



率の符号は、左ネジ楕円偏光の方をプラスになるように定義した。(a) の図の中に、移相子および試料結晶の複屈折により与えられる位相差に換算して、 $2\pi/100$  になる楕円率の値を垂直なバーで示してある。この値は、Bonse-Hart X線干渉計[25,26]の位相検出限界であることから、本研究で測定された直線複屈折の現象は、Bonse-Hart 線干渉計では、検出が難しかったであろうことがわかる。 $2\pi/100$ の位相検出限界という量は、スプリッター、ミラー、アナライザー結晶の相対位置と角度をどれだけの精度で静止させられるかという、技術的問題による限界である。Fig. 9 (b) と (c) の左の隅の横長の小さな長方形で囲った領域を拡大表示したのが、Fig. 10 の (a) と (b) である。コバルト吸収端から  $+2\text{ eV}$  のあたりに、互いに反転した小さなシグナルが見られるが、この反転により、これは明らかに有意なシグナルであることが判る。Fig. 10

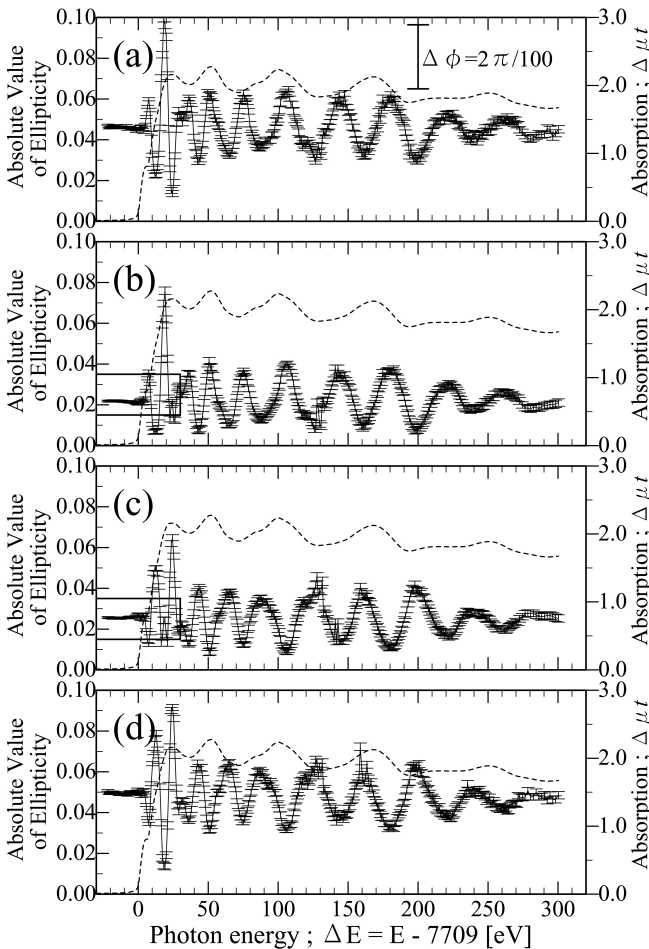


Fig. 9 Spectra of ellipticity of polarization obtained with an *hcp* cobalt single crystal foil. (a), (b), (c) and (d) correspond to initial ellipticity values,  $-0.04$ ,  $-0.02$ ,  $+0.02$  and  $+0.04$ , respectively, which were applied by controlling the phase retarder crystal.

(a) の中に示した縦のバーが  $2\pi/1,000$  の位相差であり、低エネルギー側でのエラーバーの半値は、 $2\pi/10,000$  より小さい。このスペクトルを「X線の偏光の干渉」[27]を観測していると捉えた場合、その干渉計としての位相検出能力は、 $2\pi/10,000$ 程度であるといえる。原子サイズの  $1/10,000$  のX線波面のズレが見えているのである。吸収端より高エネルギー側では、X線光子数の減少から、エラーバーは大きくなっている。このことから  $2\pi/10,000$  の位相検出限界は、今のところ量子統計にのみ支配された値であることがわかる。アナライザーを使って偏光の干渉を実現したとき、スペクトロスコーピーだけでなく、イメージング (1996年、平野によって行われている[28])に於いても、このことは言えるであろう。この驚異的な位相検出能力は、干渉し合う波が、まったく同じ光路を伝搬することから、二光束干渉における光路差の安定性の問題がないことにより達成されている。しかし同時に、このことにより、複屈折を起こさない物体で位相コントラストを得られないかのように思える。しかし方法はある。可視光に於いて既に行われている、ノマルスキー型微分干渉顕微鏡やスミス干渉計のように、シェアリングプリズムを使えば、波は自分自身と干渉するこ

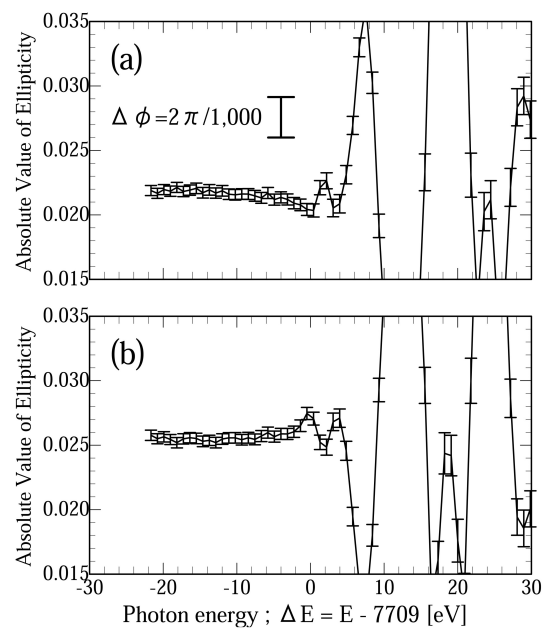


Fig. 10 Expanded spectra of ellipticity of polarization obtained with an *hcp* cobalt single crystal foil. (a) and (b) correspond to small square region drawn in left lower of parts of Fig. 10 (b) and (c).

とになる。X線波長でのシェアリングブリズムには、完全結晶における動力的回折理論から導かれる、 $\sigma$ -偏光と  $\pi$ -偏光のポインティングベクトル、あるいは群速度のズレを用いればいい。

### 謝辞

本研究は、次の方々との共同研究として行われました。東京大学の雨宮慶幸教授、上エ地義徳博士、長谷川祐司博士、スプリングエイトサービスの小口拓世博士、ワシントン州立大学の佐藤公法博士、物質構造科学研究所の松下正教授、広島大学の圓山裕教授に心より感謝申し上げます。

収差補償型X線移相子のダイヤモンド結晶の調整は、東京大学工学部強力X線実験室に於いて行われたこと、放射光実験は、おもに Photon Factory の S 型課題 99S2-003 により行われたことを明記します。

### 参考文献

- [1] G. Schütz, W. Wagner, W. Wilhelm, P. Kienle, R. Zeller, R. Frahm and G. Materik : Phys. Rev. Lett. **58**, 737 (1987).
- [2] H. Maruyama, T. Iwazumi, H. Kawata, A. Koizumi, M. Fujita, H. Sakurai, F. Itoh, K. Namikawa, H. Yamazaki and M. Ando: J. Phys. Soc. Jpn. **60**, 1456 (1991).
- [3] K. Hirano, K. Izumi, T. Ishikawa, S. Annaka and S. Kikuta: Jpn. J. Appl. Phys. **30**, L407 (1991).
- [4] K. Hirano, T. Ishikawa and S. Kikuta: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. **A336**, 343 (1993).
- [5] K. Hirano, T. Ishikawa and S. Kikuta: Rev. Sci. Instrum. **66**, 1604 (1995).
- [6] K. Hirano and H. Maruyama : Jpn. J. Appl. Phys. **36**, L1272 (1997).
- [7] M. Suzuki, N. Kawamura, M. Mizumaki, A. Urata, H. Maruyama, S. Goto and T. Ishikawa: Jpn. J. Appl. Phys. **37**, L1488 (1998).
- [8] M. Hart: Philos. Mag. **B38**, 41 (1978).
- [9] S. Annaka, T. Suzuki and K. Onoue: Acta Crystallogr. **A36**, 151 (1980).
- [10] S. Annaka: J. Phys. Soc. Jpn. **51**, 1927 (1982).
- [11] J. A. Golovchenko, B. M. Kincaid, R. A. Lvesque, A. E. Meixner and D. R. Kaplan: Phys. Rev. Lett. **57**, 202 (1986).
- [12] D. M. Mills: Phys. Rev. **B36**, 6178 (1987).
- [13] K. Okitsu, Y. Ueji, K. Sato and Y. Amemiya: J. Synchrotron Rad. **8**, 33 (2001).
- [14] K. Okitsu, Y. Ueji, K. Sato and Y. Amemiya: Acta Crystallogr. **A58**, 146 (2002).
- [15] 沖津康平, 上エ地義徳, 佐藤公法, 雨宮慶幸: 東大工学部 総合試験所年報 Vol. **58**, 231 (1999).
- [16] K. Sato, K. Okitsu, Y. Ueji, T. Matsushita and Y. Amemiya: J. Synchrotron Rad. **7**, 368 (2000).
- [17] 佐藤公法, 上エ地義徳, 沖津康平, 長谷川祐司, 松下正, 雨宮慶幸: 日本放射光学会誌 **13**, 304 (2000).
- [18] 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).
- [19] K. Sato, Y. Ueji, K. Okitsu, T. Matsushita and Y. Amemiya: J. Synchrotron Rad. **8**, 1021 (2001).
- [20] K. Sato, Y. Ueji, K. Okitsu, T. Matsushita, J. Saito, T. Takayama and Y. Amemiya: J. Magn. Soc. Jpn **25**, 206 (2001).
- [21] K. Sato, Y. Ueji, K. Okitsu, T. Matsushita, J. Saito, T. Takayama and Y. Amemiya: Phys. Rev. **B65**, 134408 (2002).
- [22] K. Okitsu, T. Oguchi, H. Maruyama and Y. Amemiya: J. Synchrotron Rad. **5**, 995 (1998).
- [23] 沖津康平, 上エ地義徳, 小口拓世, 圓山裕, 長谷川祐司, 雨宮慶幸: 日本結晶学会誌 **40**, 341 (1998).
- [24] M. Hart and A. R. D. Rodrigues: Phyl. Mag. **B40**, 149 (1979).
- [25] U. Bonse and M. Hart: Appl. Phys. Lett. **6**, 155 (1965).
- [26] U. Bonse and M. Hart : Appl. Phys. Lett. **7**, 99 (1965).
- [27] K. Okitsu: J. Phys. Soc. Jpn. **62**, 911 (1993).
- [28] K. Hirano: J. Appl. Phys. **79**, 3365 (1996).