

氏名 小 口 拓 世

学位（専攻分野） 博士（学術）

学 位 記 番 号 総研大甲第 1 5 1 号

学位授与の日付 平成 7 年 9 月 2 8 日

学位授与の要件 数物科学研究科 放射光科学専攻

学位規則第 4 条第 1 項該当

学 位 論 文 題 目 波長可変型 X 線ポラリメーターの製作とファラデー効果の測定

論文審査委員 主 査 教 授 宮 原 恒 豊

教 授 安 藤 正 海

教 授 松 下 正

教 授 下 村 理

助教授 雨 宮 慶 幸

助教授 並 河 一 道

（東京学芸大学）

助教授 圓 山 裕（岡山大学）

## 論文内容の要旨

光の伝搬に対して物質が示す応答の異方性によって直線複屈折、直線二色性、旋光性（円複屈折）、円二色性などの偏光現象が起こる。可視光領域ではこれらの偏光現象は古くから知られており、これまでに多くの研究がなされてきた。一方、X線領域では、波長可変のX線光学素子が得られ難かったことと、偏光度の高いX線源が無かったことから、これまで偏光現象の実験研究はあまり行われていない。しかし、結晶作製技術の進歩によるX線光学素子の発達と放射光X線の出現は、これまで困難であったX線領域での偏光実験を可能にした。

本研究は、1) 波長可変のX線偏光子を用いた波長可変型X線ポラリメーターを製作し、その性能を評価し、2) 装置の応用としてX線領域におけるファラデー効果、直線二色性、直線複屈折の定量測定を行い、3) X線領域での偏光解析実験の測定法を開拓すること、を目的として行った。

波長可変型X線ポラリメーターは偏光子と検光子をビーム軸まわりに直角に配置（クロスニコル配置）し、直線偏光X線を試料に入射させ、その透過X線の偏光状態を解析する装置である。完全結晶でX線が回折する場合、X線の電場の偏光面が散乱面に平行な場合（ $\pi$ 偏光）と散乱面に垂直な場合（ $\sigma$ 偏光）では回折強度曲線の大きさが異なる。特に、 $\pi$ 偏光はブラッグ角が $45^\circ$ の時に消滅する。但し、その場合、結晶が偏光子として機能するのはブラッグ角が $45^\circ$ になる波長に限定されてしまう。波長可変な偏光子にするためには、 $\pi$ 偏光の回折強度曲線の幅よりも大きめにブラッグ角をずらし（オフセットし）、X線を数回反射させる。オフセットしてX線を数回反射させると、ブラッグ角を厳密に $45^\circ$ にしなくても $45^\circ$ に近い角度ならば、 $\pi$ 偏光は反射の度に消光していく。本研究の偏光子と検光子はSi(422)面のチャンネルカット二結晶モノクロメーターを4回反射で用いる。偏光子と検光子には、小型のマグネットが付いており、二結晶の平行度を僅かにずらしオフセット角を調整することができる。この結晶では、7.0 keV  $\sim$  9.2 keV のエネルギー範囲であれば、 $\sigma$ 偏光の強度を $\pi$ 偏光の強度で割った値（消光比）を約 $10^9 \sim 10^8$ （計算値）に保つことができる。

偏光測定は偏光子と検光子、及び、検光子後方の検出器（SSD）で行なう。検光子をクロスニコル位置から回転させると回転角に対して検光子を通過するX線ビームの強度が変化する。検光子の回転角と検光子を通過するX線ビームの強度変化の関係は、X線の偏光面の回転角と楕円偏光度をパラメーターとしたコサイン関数で表すことができる。測定した強度変化を最小二乗法（Marquardt法）によりフィッティングして、X線の偏光面の回転角と楕円率を求める。実験は0.96 eVごとにX線のエネルギーを変えて81点で偏光解析を行い、Co K-edge（7.7 keV）を中心に70 eVの範囲で偏光面の回転角スペクトルと楕円率スペクトルを測定した。試料の前後にはイオンチェンバーが置かれ、試料の吸収スペクトルの測定と入射X線の強度測定に用いられる。試料に磁場をかけるために実験で用いた磁石は二種類で、一つは1 Tの磁石でビームと平行に試料磁場をかけ

られ、もう一つは 0.06 T の磁石でビームに対して  $45^\circ$  傾けて試料に磁場をかける。以上のようなハードウェアの製作に加えて、自動測定プログラムの作成、アライメント方法の手順の定式化を含めた測定方法の確立を行なった。

ところで、この装置は偏光子が X 線の回折現象を利用しているため、グリッチ（同時反射）の問題が起きる。グリッチが起きると偏光状態が崩れ、その波長での偏光解析が不可能となる。グリッチを避けるためには結晶の反射面を面内回転させる。測定波長範囲での適当な面内回転の角度を知るために、グリッチマップを計算し、適当な角度の面内回転をさせて、グリッチのない領域を用いて測定を行った。また、検光子結晶は方位角回転させるため、重力の影響で検光子のオフセット角が一定に保たれない。検光子の回転によってオフセット角が変化してしまうと、検光子の消光比が変わり正確な偏光解析が行えない。そのため、補正用のデータを偏光解析とは別に測定し、重力によるオフセット角への誤差の補正を行った。波長可変型 X 線ポラリメーターの性能を評価したところ、回転角の精度は  $30\mu\text{rad}$  で、検出限界楕円率は約  $10^{-3}$ （振幅比）であった。

本研究では、純 Co 箔や CoFe 合金の粉末試料でのファラデー回転角の精密測定を行った。ファラデー回転角測定は、試料磁場をビーム方向に対して平行と反平行の二通りで回転角スペクトルの測定を行ない、二つの回転角スペクトルの差を求めて磁気のみによる回転角スペクトルを抽出した。Co K-edge 付近の波長で、 $4\mu\text{m}$  の厚さの純 Co の測定では、ファラデー回転の最大値は  $1.8\text{ mrad}$  であった。ファラデー回転角は右円偏光と左円偏光に対する媒質の誘電率の実数部の差に比例し、X 線磁気円二色性は右円偏光と左円偏光に対する媒質の誘電率の虚数部の差に比例する。誘電率の実数部と誘電率の虚数部の間にはクラマースクロニヒの関係式が成り立つので、ファラデー回転角と X 線磁気円二色性もクラマースクロニヒの関係式で結び付けられる。そこで、この装置で測定されたファラデー回転スペクトルを、クラマースクロニヒ変換し、同一試料を測定した X 線磁気円二色性の実験結果と比較してみることを行なった。その結果、ファラデー回転スペクトルのクラマースクロニヒ変換と X 線磁気円二色性のプロファイルの形状は、振幅に任意性があるものの、非常に良く一致した。そのことは、ポラリメーターによるファラデー効果の測定が正しいことを示すとともに、クラマースクロニヒ変換が X 線領域で成り立つことがこの実験を通してはじめて実証された。ファラデー回転と同時に観測されるはずのファラデー楕円率は、X 線磁気円二色性の実験値から予想される値が、 $10^{-4}$  程度であり、この装置では観測することができなかった。

また、hcp の純 Co 多結晶の箔の回転角測定において試料磁場、平行と反平行の二つの回転角スペクトルを比較すると、Co K-edge ( $7.7\text{ keV}$ ) よりも  $10\sim 30\text{ eV}$  高いエネルギーで両者が非対称になっている部分が見られた。そこで、試料磁場を反転させて測定した二つの回転角の和を求めて、磁化に依存しない旋光性が有ることを確認した。その原因を解明するために、hcp の純 Co 単結晶の箔を作製し、磁場をかけない状態での偏光測定を行った。その結果、Co K-edge ( $7.7\text{ keV}$ ) よりも  $10\sim 30\text{ eV}$  高いエネルギーで直線二色性と直線複屈折が観測された。更に、測定した直線二色性と直線複屈折がクラマースクロニヒの関係にあることも定量的に確認した。これまでに X 線領域で吸収スペクトルの偏光依存性から直線二色性を測定した例はあるが、偏光状態を観測して直

線二色性と直線複屈折を同時に測定したのは本研究がはじめてである。ただし、この直線二色性と直線複屈折の原因が hcp 結晶の異方性によるものか、内部磁場の異方性によるものかについて検証することは課題として残された。

以上の、単結晶の測定結果から、hcp の純 Co 多結晶での磁化に依存しない回転角と楕円率について解明することができた。即ち、多結晶では異方性のある結晶が色々な方位に存在するため、直線二色性と直線複屈折が起こると、偏光がランダム偏光のようになり、それが磁化に依存しない回転角や楕円率として観測されることで説明できる。

本研究では以上のように、1) 波長可変型 X 線ポラリメーターを製作し、その性能評価を行い、2) 装置の応用として、Co K-edge (7.7 keV) 付近でのファラデー効果の測定、直線二色性と直線複屈折の同時測定を行い、さらに、ファラデー効果と磁気円二色性、直線二色性と直線複屈折のそれぞれの関係において、X 線領域でもクラマースクロニヒ変換が成り立つことを実験的に確認し、これら、装置の製作・立ち上げ、応用測定を通して、3) X 線領域での偏光解析実験の手法を開拓した。

## 論文の審査結果の要旨

小口君の博士論文の内容は、1) 波長可変型X線ポラリメーターの製作・立ち上げ・性能評価を行なったこと、2) それを応用して、コバルトK吸収端でのファラデー効果、直線二色性、直線複屈折の定量測定を行い、X線領域でもクラマース・クロニッヒ関係が成立していることを実験的に明らかにしたこと、および、これらの実験を通して、3) X線領域での偏光解析実験の測定法を開拓したこと、である。

まず、2枚のシリコン完全結晶(422面)をわずかに(0.5秒程度)平行からオフセットすることにより、波長可変でかつ高度な消光比( $10^8$ )を有するエックス線に対する偏光素子および検光子を製作した。そして、それらを直交ニコルの配置で組み合わせた波長可変型X線ポラリメーターを製作し、それを用いてX線偏光解析実験を行うための自動計測用ソフトウェアを作製した。この波長可変型X線ポラリメーターはX線偏光面の回転を30マイクロラジアン精度で測定でき、楕円偏光度( $I(\sigma)/I(\pi)$ )は $10^{-7}$ まで測定できる性能を有する。これらの性能を実現するために、小口君はシリコン結晶の遠回り反射によるグリッチを回避するための考察、および、結晶のオフセット角の重力による誤差を補正するための考察を行った。

次に、製作した波長可変型X線ポラリメーターを用いて強磁性体であるコバルト、およびその化合物に対してコバルトK吸収端(7.7 keV)でのファラデー効果を測定した。そして、その実験結果を同一の試料を用いて他のグループが測定した円二色性の実験結果と定量的に比較し、それらがお互いにクラマース・クロニッヒ関係の関係で結びついていることを実験的に確認した。ファラデー効果は左右の円偏光に対する屈折率の差から生じ、円二色性は左右の円偏光に対する吸収率の差から生じるので、クラマース・クロニッヒ関係が成り立つことは可視光では良く知られている。しかし、X線領域の電磁波に対して実験的に定量的に示したのは世界で初めてである。さらに、一軸異方性のある純コバルト

(六方晶系)が磁場をかけない状態でK吸収端で直線二色性と直線複屈折を示すことを波長可変型X線ポラリメーターを用いて観察した。現段階では、これらが結晶学的異方性に起因するものなのか、内部磁場の異方性に起因するものなのかは突き止めるところまでは至っていない。しかし、これまでX線領域での吸収スペクトルの差から直線二色性を測定した例はあるが、X線偏光解析法を用いて直線二色性と直線複屈折を同時に測定した例は始めてである。また、同時に測定された直線二色性と直線複屈折がお互いにクラマース・クロニッヒ関係で結ばれることを実験的に確認した。

以上の研究、および、これらを通じて放射光の特色(大強度、連続波長、高度偏光性)を生かしたX線偏光解析実験方法を開拓したことが本研究の内容である。

これらの内容は博士論文として十分な学術的水準に達して研究業績であると判断され、また広く、確実な基礎的知識を有していると判断した。