

光の偏光を制御する

鈴木基寛 財団法人高輝度光科学研究センター 〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
E-mail : m-suzuki@spring8.or.jp

広野等子 財団法人高輝度光科学研究センター 〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
E-mail : hirono@spring8.or.jp

1. はじめに

前回までは、光のエネルギーを切り出す分光器や、光の形を整形するミラーを取り上げてきました。今回は、光のもうひとつの重要な性質である偏光を制御する方法について解説していきます。

「偏光」がテーマと聞いて、「放射光の偏光なんて、特殊な実験をする一部の人がだけが使うものさ。いつも使っているビームラインには偏光素子らしきものは見当たらないし、自分の実験には関係ないよ」こんなふうにも思われた方もいらっしゃるのではないのでしょうか。そういうアナタ、それは大きな誤解です！

放射光はその放射の原理からして偏光しています。放射光実験では誰もが偏光した光の使用を余儀なくされているのです。たとえユーザーが積極的に偏光を使うことを意図しなくても、偏光をうまく扱うことで実験の効率を高める工夫が放射光施設ではなされています。また、偏光に対して適切な実験配置を組むことで、バックグラウンドを減らして測定のス/N比を高めることもできます。生データには偏光の効果が含まれることがあり、それを取り除くための補正もしばしば必要になります。

偏光を積極的に活用するという観点からすると、X線や真空紫外の領域でさまざまな偏光状態の、しかも偏光の純度(偏光度)の高い光が得られる光源は放射光以外にはありません。

本稿では、軟X線と硬X線の放射光ビームラインに的を絞って、偏光を生成する方法とそこで使われている偏光素子について解説します。現在利用できる偏光状態、偏光度、切り替え速度、その応用等について述べます。さらに問題点や注意すべき点もご紹介します。

1.1 偏光を使うと何がわかるか

偏光を積極的に使うと何がわかるのでしょうか。得られる情報は直線偏光と円偏光の場合¹で異なります。

直線偏光を使った測定では、試料の異方性を調べること

ができます。つまり、試料が方向によって異なる性質を持っているかどうか、もし異方性があるならその理由は何かを知ることができるのです。

放射光に限らず、光を使って物質の性質を調べることは、光の電場に対する電子の応答を見ることだといえます。この観点に立つと、放射光の測定とは次の3つの過程、(1)光の電場で物質中の電子を揺らす、(2)電子が揺らされることによって起こる現象を観測する、(3)観測結果から、揺らされる前の物質(電子)の状態を推定する、から成っているといえます。

直線偏光を使うと、(1)の過程で電子を揺らす方向を特定できます。これはブランコに例えるとわかりやすいかもしれません。子どもが座っているブランコを背中から押してやれば、前後方向に大きく揺れるでしょう。一方、これは普通の押し方ではありませんが、ブランコを横から押してやると、左右方向には小さくしか揺れません。私たちは、ブランコは二本の鎖でつるされているため、前後には揺れやすいが左右には揺れにくいことを知っています。でも、もしブランコの構造を知らなくても、押した方向(偏光)による揺れ方(応答)の違いからブランコの構造を推定することは可能でしょう。

例としてSPRING-8で行われた偏光XAFS実験を紹介しましょう¹⁾。亜鉛ポルフィリン錯体の単分子膜を水溶液表面に展開し、膜面に平行な直線偏光と垂直な直線偏光を用いてXAFS測定を行ったところ、膜面に平行方向ではスペクトルの吸収ピークが小さく、垂直方向では大きなピークが観測されました。これは上のブランコと対応させると、水平方向の電場に対しては電子(ブランコ)が動きにくく、垂直方向に対しては動きやすいことを示しています。この結果から、亜鉛を取り囲む分子構造や膜内での分子の配向方向を明らかにすることができました。

円偏光は磁性体や、らせん(キラル)構造をもつ物質の測定に用いられます。磁性体では電子の軌道角運動量やスピン角運動量が全体としてゼロでなく、このことが磁性の起源となっています。円偏光は、ちょうど石臼を回すように電子に一方方向の円運動を行わせます。そのため電子の軌道運動が加速あるいは減速されます。量子力学的な表現を

¹ これらの偏光状態については2.1節で述べます。

すると、右回り円偏光の光子は $-\hbar$ 、左回り光子は $+\hbar$ の角運動量を持ち、その角運動量を電子に渡します。電子がもともと持っている角運動量の値によって、角運動量を増やすことはできても減らすことはできない（もしくはその逆）の状況が生じます（角運動量の選択則とパウリの排他原理による）。その結果、左右の円偏光に対する吸収や散乱強度が異なります。この円偏光に対する応答の違いを利用した測定法が磁気円二色性（X-ray Magnetic Circular Dichroism: XMCD）分光²⁾です。Fe や Ni などの磁性体では、左右の円偏光に対する吸収スペクトルがわずかに異なり、これらのスペクトルの差分を XMCD スペクトルと呼びます。XMCD スペクトルの大きさは試料中の磁性元素の磁化に比例しています。XAFS と同じように X 線のエネルギーを元素吸収端に合わせることで、試料が複数の磁性元素からなる場合でも特定の元素の磁性だけを観測できます。XMCD は非常に高感度な磁化測定法であり、試料表面の 1 原子層以下の薄膜試料や吸着分子、ナノ構造の磁気測定が可能です。

偏光を活用したその他の実験としては、分子の内殻分光で対称性を分離する実験、共鳴散乱や磁気散乱で入射 X 線の偏光状態を制御したり回折光の偏光状態を調べる実験が行われています。

2. 偏光についての共通事項

2.1 偏光状態とその表し方

放射光実験で使われる偏光はおもに二種類あります。直線偏光と円偏光です。直線偏光は、電場ベクトルが文字通り直線的に振動しています。電場ベクトルは常にある決まった方向を向いていて、その大きさだけが時間もしくは光の進行方向とともに増減します（Fig. 1(a), (b), (c)）。一方、円偏光では電場ベクトルの大きさは常に一定で、その方向だけが時間と共に変わります（Fig. 1(d), (e)）。光（X 線）を平面波と考え、その進行方向に直交する面内の水平方向に x 軸、垂直方向に y 軸をとります。偏光子の位置での電場の時間変化を考えると、光の電場は時間 t に対して、 xy 面内で振動します。電場ベクトルの x 成分と y 成分は次のように表すことができます。

$$\begin{cases} E_x = E_{x0} \cos \omega t \\ E_y = E_{y0} \cos (\omega t + \delta) \end{cases} \quad (1)$$

ここで、角振動数 $\omega = 2\pi c/\lambda$ 、 λ を波長、 c を光速、 δ を E_{x0} と E_{y0} の位相差とします。式(1)の意味するところは、 x 方向の電場も y 方向の電場も等しい振動数 ω で余弦波的に振動するということです。振幅はそれぞれ E_{x0} と E_{y0} で異なっています。また、両成分の位相は位相差 δ だけ異なります。

2.1.1 直線偏光

直線偏光とは電場ベクトルが常にある決まった方向を向いている光の偏光状態のことです。式(1)で直線偏光を表現するには、 E_x と E_y の比は時間が変化しても一定であるようにしなくてはなりません。つまり、式(1)の位相差 $\delta = 0$ または $\pm\pi$ です。 $\delta = 0$ を代入し、見通しをよくするために、 $E_{x0} = E_0 \cos \phi$ 、 $E_{y0} = E_0 \sin \phi$ と置き換えると、

$$\begin{cases} E_x = E_0 \cos \phi \cos \omega t \\ E_y = E_0 \sin \phi \cos \omega t \end{cases} \quad (2)$$

となります。図に描くと Fig. 1(c) のように表現できます。これは水平方向から方位角 ϕ だけ傾いた（Fig. 1(c) の場合 $\phi = 45^\circ$ ）電場ベクトルをもつ直線偏光を表しています。方位角 ϕ が 0° と 90° の直線偏光をそれぞれ水平直線偏光、垂直直線偏光と呼ぶことがあります。水平直線偏光と垂直直線偏光の模式図を Fig. 1(a), (b) に示します。

2.1.2 円偏光

円偏光とは電場ベクトルの大きさが常に一定である偏光状態のことです。式(1)は $\delta = \pm\pi/2$ かつ $|E_{x0}| = |E_{y0}|$ です。式(2)と同じ形式で円偏光を記述すると、

$$\begin{cases} E_x = E_0/\sqrt{2} \cos \omega t \\ E_y = \mp E_0/\sqrt{2} \sin \omega t \end{cases} \quad (3)$$

となります。上式で負の複号は右回り（ $\delta = \pi/2$ ）、正は左回りの円偏光（ $\delta = -\pi/2$ ）に対応します²⁾。 $\delta = \pi/2$ の場合を Fig. 1(d) に、 $\delta = -\pi/2$ の場合を Fig. 1(e) に示します。

方位角 ϕ と位相差 δ は両方とも角度で表すため混乱しやすいですが、円偏光と直線偏光の違いがイメージできたでしょうか？

2.1.3 偏光度

ここまでは、光が完全に偏光している場合について考えました。「完全に偏光している」とは、「電場ベクトルの振動が常にある相関を保っている」という意味です。完全に偏光した直線偏光では、その電場ベクトルの方向はいつ測っても常に同じ方向を向いています。完全な円偏光は時間平均では電場ベクトルはどの方向にも偏っていませんが、瞬間瞬間ではベクトルは特定の方向を向いており、時間と共に規則正しく回転しています。

一方、全く偏光していない光では電場ベクトルの方向は時間と共に揺らいています。もし非常に短い時間間隔で測

²⁾ 円偏光の回転方向の定義には二種類あります。光の進行方向と同じ方向を向いて偏光子上の電場ベクトルの軌跡を観測したときの回転方向を円偏光の左右とする場合と、光に正対して観測したときの回転方向を円偏光の左右とする場合があります。本稿では後者の定義を採用します。

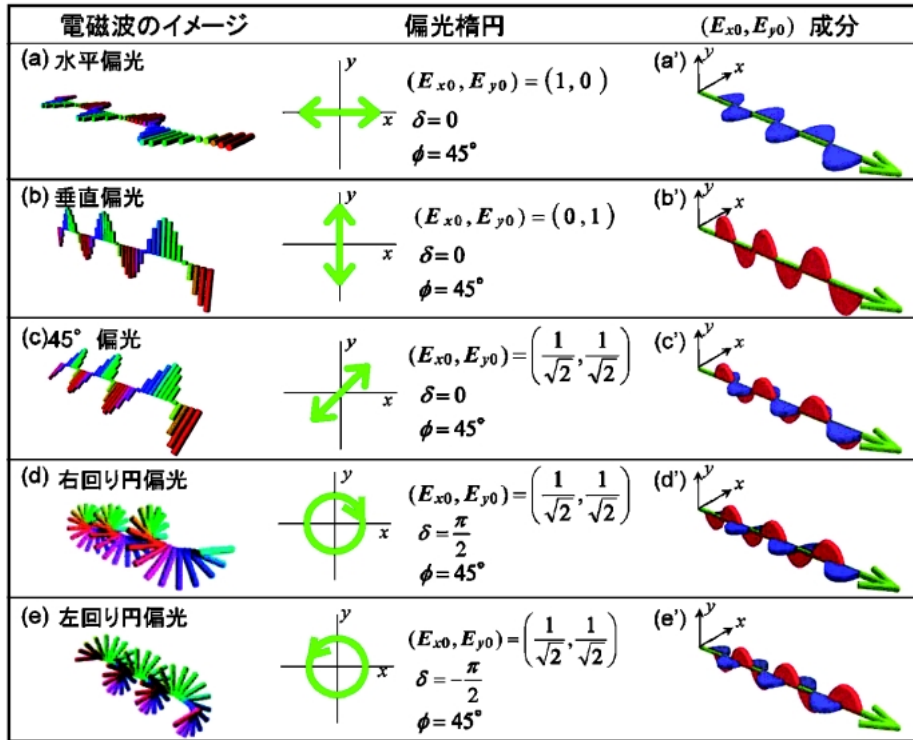


Fig. 1 Various polarization states.

定が行えるとする、ベクトルの方向は測定のたびに全くバラバラの方向を向いていて、それぞれの測定結果に相関はありません。このように電場ベクトルの方向が全くバラバラの光を、偏光していない光という意味で、「無偏光」あるいは「非偏光」と呼びます。

現実には完全に偏光した光はなく、すべての光は完全偏光と非偏光の間にあるといえます。光がどれだけ完全な偏光に近いかを表すために、「偏光度」という量が使われます。偏光した成分の強度を I_{pol} 、非偏光成分の強度を I_{non} とすると、偏光度 V は、

$$V = \frac{I_{\text{pol}}}{I_{\text{pol}} + I_{\text{non}}} \quad (4)$$

と表されます。つまり、偏光度とは、全光強度に対する完全に偏光した成分の強度の割合です。

一方、「水平直線偏光度」や「円偏光度」という言葉もよく使われます。これらは、上で述べた偏光度 V とは少し違う意味をもっていて、いわば測定に必要な偏光状態の割合を表す量ということです。水平方向の直線偏光成分の強度を I_x 、垂直方向の直線偏光成分の強度を I_y とすると、水平直線偏光度 S_1 は、

$$S_1 = \frac{I_x - I_y}{I_x + I_y + I_{\text{non}}} \quad (5)$$

と表されます。 $I_x + I_y = I_{\text{pol}}$ だから、分母は全光強度です。

Fig. 1(a) のような完全な水平直線偏光のとき $S_1 = 1$ 、Fig. 1(b) のような完全な垂直直線偏光では $S_1 = -1$ となります³。同様に円偏光度 P_C は、

$$P_C = \frac{I_R - I_L}{I_R + I_L + I_{\text{non}}} \quad (6)$$

と表されます。ここで、 I_R (I_L) は右回り (左回り) 円偏光成分の強度です。完全な右回り円偏光のとき $P_C = 1$ 、完全な左回り円偏光では $P_C = -1$ となります⁴。

偏光 XAFS 測定や MCD 測定での信号強度は、ビームラインで供給される光の S_1 や P_C の値に比例します。したがって、これらの値は大きいほうが望ましく、たとえば MCD 測定の場合、 $P_C = 0.5$ の光で実験すると生データの MCD 信号は $P_C = 1$ の光で実験した場合の半分になってしまいます。また、正しいデータを得るには生データに対し

³ Fig. 1(c) の場合、電場ベクトルが常に方位角 -45° を向いている直線偏光ですが、「水平直線偏光度」は 0 です。一方、どれだけ電場ベクトルが一定方向を向いているかを表した量を「直線偏光度」といい、この値は方位の異なる Fig. 1(a), (b), (c) いずれの場合も 1 です。「水平直線偏光度」を省略して「直線偏光度」という場合もありますが、本稿では「水平直線偏光度」を S_1 、「直線偏光度」を P_L と表記し、区別して用います。これら偏光状態はストークスパラメーター³⁾を使って表現するとわかりやすく取り扱えますが本稿の範囲外とします。

⁴ S_1 および P_C は -1 から 1 までの値をとりますが、 $P_C = 0.95$ を円偏光度 95% というようにパーセントで表す場合もあります。

て S_1 や P_C の値を考慮した補正が必要です。

2.2 偏光の作り方—ある偏光状態から別の偏光状態への変換

多くの放射光ビームラインでは偏光電磁石や直線アンジュレーターなど水平直線偏光が得られる光源をもつため、円偏光や垂直直線偏光は、しばしば水平直線偏光を変換して生成されます。偏光状態を変換する原理は、光の波長や偏光素子の構造・材質にかかわらず共通です。この節では偏光状態を変換する原理だけを述べて、ビームラインにおける具体例については、第4節と5節で紹介します。

2.2.1 直線偏光から円偏光への変換

2.1節で見たように、直線偏光では電場ベクトルの直交する二成分は同位相で振動し (Fig. 1(a'), (b'), (c')), 円偏光では位相が $\pi/2$ (Fig. 1(d'), (e')) だけ異なっています。したがって、直線偏光の電場ベクトルの二成分の間にちょうど $\pi/2$ の位相差をつけることのできる偏光素子を使えば、直線偏光を円偏光へ変換することができます。このように電場の位相をずらす作用をもつ偏光素子を移相子と呼びます。そして、ずれる位相が $\pi/2$ である移相子を $\lambda/4$ 板と呼びます。

2.1節の式を使って考えてみます。位相差 $\delta=0$ 、振幅 $E_{x0}=E_{y0}=E_0/\sqrt{2}$ のとき式(1)は方位角 ϕ が 45° のときの式(2)と同じになり直線偏光です。ここで、 $\lambda/4$ 板を使って位相差を $\delta=\pi/2$ にずらします。結果は式(3)になります。つまり $\lambda/4$ 板によって方位角 45° の直線偏光は右回りの円偏光に変換されたことになります。同様に、位相差 $\delta=0$ 、振幅 $E_{x0}=E_{y0}=E_0/\sqrt{2}$ の方位角 $\phi=-45^\circ$ の直線偏光に $\lambda/4$ 板を使えば左回りの円偏光になります。

2.2.2 水平直線偏光から垂直直線偏光への変換

水平直線偏光から垂直直線偏光への変換には、 π の位相差を作り出す移相子 ($\lambda/2$ 板) を使います。式(1)で位相差 $\delta=0$ 、振幅 $E_{x0}=E_{y0}=E_0/\sqrt{2}$ である 45° 直線偏光に対して、位相差を $\delta=\pi$ に変換すると、元の光と方位角が 90° だけ異なる直線偏光に変換されます。したがって水平直線偏光が移相子によって方位角 $\phi=45^\circ$ となるように移相子の方位を -45° に回せば水平直線偏光を垂直直線偏光に変換することができます。

2.3 偏光の測り方

光の偏光状態を完全に言い表すには3つのパラメータを使います。直線偏光度 P_L と方位角 ϕ と円偏光度 P_C です。これらのパラメータを測定する方法について考えてみます。

直線偏光度 P_L と偏光の方位角 ϕ を測定するには「偏光子」と呼ばれる光学素子を使用します。この素子はある方向に振動する電場ベクトルをもつ光のみを通して、それに直

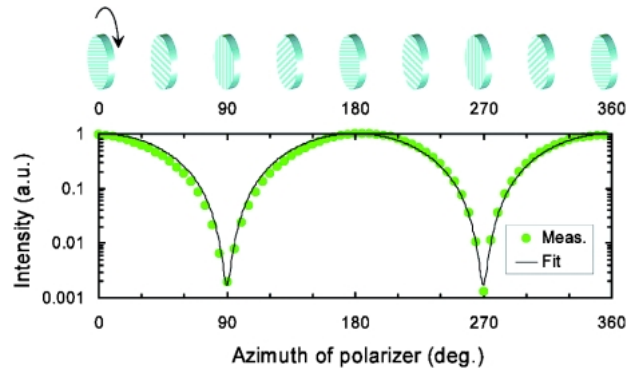


Fig. 2 The rotating analyzer method. Intensity of light transmitted through a linear polarizer is monitored as a function of azimuth of polarizer.

交方向に振動する光を通しません。

軟 X 線や硬 X 線領域では反射型の偏光子を使います。物質の反射率は入射角や偏光状態によって異なり、屈折率が n の透明な物質の場合、 $\tan \theta=1/n$ となる入射角 θ (ブリュースター角) では散乱面 (入射する X 線の光軸と反射面の法線を含む平面) に垂直な直線偏光成分 (σ 偏光) だけ反射して平行な成分 (π 偏光) を反射しません (Fig. 7)。この性質を偏光子として利用できます。屈折率が 1 に近い場合、ブリュースター角は 45° になります。光の波長に対して、ブラッグ角が 45° になるような結晶や多層膜が偏光子として利用されています。

直線偏光を偏光子を通して、偏光子を回転させながら光の強度を観測すると、光の電場ベクトルの振幅の方向が偏光子の光を通す方向と一致するとき強度は大きくなり、直交すると 0 になります。光の強度をグラフにすると、コサイン自乗のカーブを描きます (Fig. 2)。一方、非偏光の光や円偏光の場合は電場の振幅方向に偏りがないので、偏光子を回転させても強度は変化しません。変化の量 (コサイン自乗カーブの振幅) を測定することによって直線偏光度 P_L を決定することができます。また、強度が最大になる方向から偏光の方位角 ϕ を得ることができます。なお、水平直線偏光度は $S_1=P_L \cos(2\phi)$ です。このように偏光子を回転させて直線偏光度 P_L と偏光の方位角 ϕ を測定する方法は「回転検光子法」と呼ばれています。

円偏光度を測定するには 2.2.2 節で登場した $\lambda/4$ 板を使います。 $\lambda/4$ 板に円偏光の光を通すと直線偏光に変化します (2.2.2 節でみた、直線偏光から円偏光への変換の逆です)。非偏光の光は $\lambda/4$ 板を通り抜けても非偏光のままです。 $\lambda/4$ 板を通った光の直線偏光度を、回転検光子法で測定すれば、円偏光度を決定することができます。

実際の光が完全な直線偏光、円偏光の光でないのと同様、実際の偏光子、 $\lambda/4$ 板も「完全な」偏光子、 $\lambda/4$ 板ではありません。正確に偏光状態を測定したり、偏光状態を変換したりするためには、使用する偏光素子の特性をあら

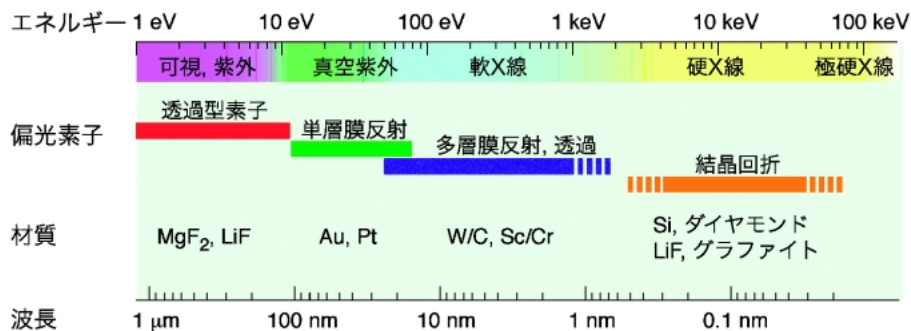


Fig. 3 Methods for generation of polarized light from the VUV to extremely hard X-ray region.

はじめ評価しておくことが重要です。

3. 偏光制御の実際

3.1 各波長領域での偏光素子

Fig. 3 に各波長域で利用可能な偏光素子とその材質をまとめます。真空紫外領域から軟 X 線領域では主に金属や多層膜からの反射が、硬 X 線領域では結晶からの回折を使った偏光子が用いられます。100 keV 以上の極硬 X 線領域では実用になる偏光素子は存在しません。円偏光など特定の偏光状態を利用するには、専用に設計された挿入光源を用います。本稿では軟 X 線と硬 X 線に領域を絞り、4 章と 5 章でそれらの領域での偏光制御について詳しく述べます。

3.2 偏光素子と挿入光源

放射光では、目的の偏光状態の光を得る方法として、偏光素子を使う方法と、特別な磁石列をもつ挿入光源⁴⁾を用いる方法とがあります。

偏光素子を使う利点は、(1)試料位置で高い偏光度を得やすいこと、(2)電子ビーム軌道への影響がないことです。ビームラインには分光器やミラーなど様々な光学素子が使われていますが、それらは直線偏光子や移相子としての性質もいくらか持っています。そのため、光源で高い純度の円偏光を生成したとしても、途中の光学素子による偏光解消効果のため、試料へ入射する光の円偏光度が低下することがあります。一方、試料の直前においた偏光素子によって偏光制御を行うことで、試料に高い円偏光度の光を入射させることができます。

利点(2)に関して、偏光素子での偏光制御は光に対して行うものなので、当然ですが蓄積リングの電子ビーム軌道には何の影響も及ぼしません。一方、挿入光源によって偏光状態をスイッチングする際は、挿入光源の磁石列の移動によって電子ビーム軌道が変動する可能性があり、常に注意を払う必要があります。

偏光素子の欠点は、素子の吸収によって光の強度が低下すること、波長域によっては実用的な効率の偏光素子が得

られないことです。

挿入光源の利点は、広い波長域にわたって強度の大きな偏光が得られること、(光学素子に入る前で)ほぼ計算通りの偏光状態が得られることです。軟 X 線や極硬 X 線域では実用的な偏光子が存在しないため、偏光の生成と制御はもっぱら挿入光源によっています。偏光子は光源の偏光状態を測定するために用いられています。

4. 軟 X 線領域での偏光制御

4.1 軟 X 線領域の偏光素子

軟 X 線領域では偏光子や移相子には主に多層膜が使用されています。多層膜は屈折率の異なる物質を何十層、何百層も重ねあわせたもので、層の厚さ等を設計することによって単体の物質にはない偏光特性を持たせることができます。

4.1.1 偏光子

軟 X 線領域では、物質の入射角 45° での反射率は低く、例えばスカンジウムの 390 eV での反射率の計算値は $\sim 0.001\%$ です。そこで、実用的な反射型の偏光子とするためには、多層膜の層周期をブラックの条件が成立するように設計して反射率を高めます。たとえば、 390 eV (波長 3.2 nm)用の偏光子を作りたいとします。入射角 45° でブラック条件を満たす多層膜の周期長は、 $3.2\text{ nm}/2\sin 45^\circ = 2.2\text{ nm}$ になります。物質は互いの屈折率の差が大きいものを選びます⁵⁾。 390 eV ではスカンジウム (Sc) とクロム (Cr) を使った多層膜がよく使われています。Sc と Cr を交互に 2.24 nm の周期で200周期積層した多層膜の σ 成分の反射率を測定すると 25% 程度が得られています (Fig. 4)。また、この偏光子の偏光能 (無偏光の光を直線偏光に変える能力) を測定すると 0.9998^5 でした。

⁵ つまり、無偏光の光を直線偏光度 0.9998 の光に変換することができます。

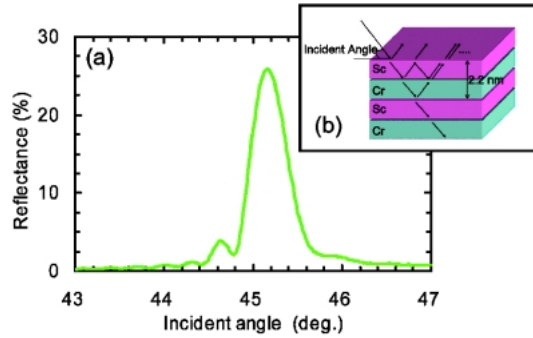


Fig. 4 Reflectance of a $[\text{Sc}(2.2 \text{ nm})/\text{Cr}(2.2 \text{ nm})]_{200}$ multilayer, which works as a reflecting polarizer.

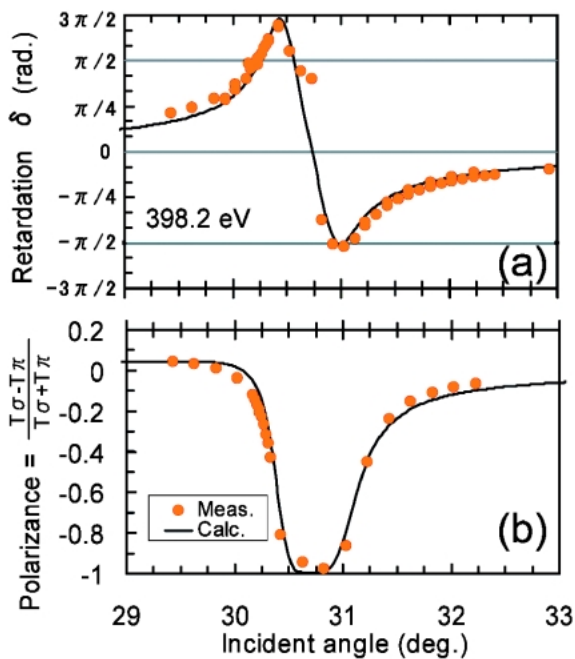


Fig. 5 Polarization characteristics of a transmitting Sc/Cr phase shifter.

4.1.2 移相子

偏光測定に使う移相子は、(1)反射または透過率が高く、(2) $\pi/2$ の位相差を作ることができ、つまり $\lambda/4$ 板であり、(3)入射面に垂直な成分と平行な成分の透過率が等しいもの、つまり偏光能が 0 に近いものがのぞまれます。軟 X 線領域では移相子には透過型の多層膜が使われています。物質を透過するときに、 σ 成分と π 成分の間に位相差が生じる物質を選び多層膜にします。そして、移相子としての特性が(1)から(3)の条件に近づくよう、多層膜の物質、周期、周期数を最適なものに設計します。

Fig. 5 に 300 周期の Sc と Cr の多層膜でつくられた移相子の偏光特性を示します⁵⁾。398 eV では 30.2° で入射した光の σ 成分と π 成分の位相のずれ δ がちょうど $\pi/2$ になっており、 $\lambda/4$ 板として使用することができます。

4.2 放射光実験に必要な偏光の作り方

現在、軟 X 線領域では水平直線偏光を効率よく他の偏光状態へ変換できる移相子 ($\lambda/4$ 板や $\lambda/2$ 板) が存在しません。特に多層膜移相子は透過率が低く、4.1.2 節で紹介した Sc/Cr 多層膜移相子の透過率はわずか 0.4% です。さらに現在の多層膜移相子は構成物質の吸収端付近の狭いエネルギー範囲でしか使用できず、偏光を測定するためには使用できますが、偏光を変換する素子としては実用的ではありません。また、光のエネルギーによっては偏光素子として使用できるものが未だに存在しない領域もあります。

そこで軟 X 線領域では、望みの偏光状態を光源で作ります。アンジュレーター光源は、中を通過する電子の軌道を工夫することによって、そこから発生する光の偏光状態を変えることができます。SPring-8 では 8 の字アンジュレーター (直線偏光) やツインヘリカルアンジュレーター (円偏光) などユニークな挿入光源が使われています。軟 X 線ビームラインの光源にユニークなアンジュレーターが多いのは、様々な偏光状態を必要とする実験に対応するためでもあるのです。

4.2.1 高速偏光スイッチング

円二色性の測定などでは、光源で偏光を切り替えながら実験します。そのため、ツインヘリカルアンジュレーターのように右円偏光と左円偏光それぞれを発生するアンジュレーター 2 台を使って交互に光を取り出す方法⁴⁾や、APPLE II 型アンジュレーターのように光源で発生する光を変化させる方法⁷⁾などが用いられています。偏光スイッチングを使った実験では、ビームラインの測定機器を光源と同期させる必要があります。SPring-8 BL25SU ではアンジュレーターの偏光スイッチング信号をロックインアンプを使って試料からの信号と同期させる測定システムが構築されており、10 Hz でのスイッチングが利用可能です⁸⁾。

4.3 軟 X 線ビームラインを使う場合の注意点

軟 X 線ビームラインでは斜入射光学系が採用されています。斜入射光学系を用いると途中の光学系で偏光状態が変化することなく、光源で作られた偏光状態をそのままビームラインで使用することができます。たとえば、SPring-8 BL25SU での試料位置での円偏光度は、400 eV において右円偏光で $P_C = 0.96$ 、左円偏光で -0.97 という高い値が報告されています⁹⁾。

しかし、例外もあります。Fig. 6 は同じビームラインでの偏光状態の測定結果です¹⁰⁾。円偏光度は低く、偏光の方位もまちまちです。ミラーに付着する汚れの多くは炭素からなるため、C の K 吸収端 (283 eV) 付近では光強度が低下します。同時に、偏光状態も劣化しているのです。偏光を使った実験をする際、軟 X 線ビームラインでの偏光状態は概ね予想どおりですが、例外もあることに注意してください。

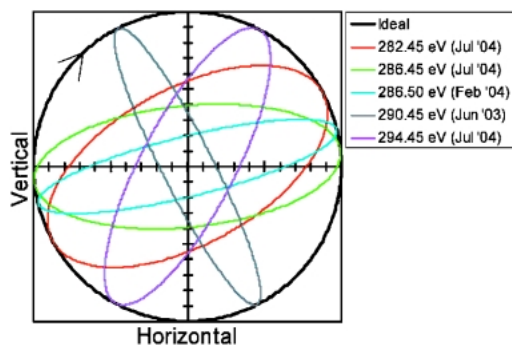


Fig. 6 Polarization states of monochromatic X-rays around the C K edge, at SPring-8 BL25SU.

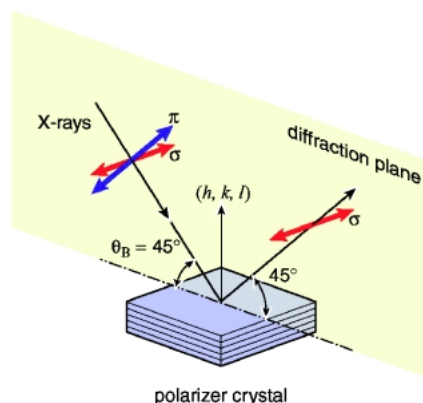


Fig. 7 A crystal with 45° Bragg reflection works as a good linear polarizer.

5. 硬 X 線領域での偏光制御

硬 X 線領域での偏光子や移相子としては結晶素子が使われています。単結晶で X 線がブラッグ回折するときの偏光方向による反射率の違いを利用することで偏光子の機能を持たせます。また、ブラッグ回折角の近くでは偏光方向によって屈折率が異なるため移相子として働かせることができます。

5.1 直線偏光をつくる素子—結晶偏光子

Fig. 7 に示すように、ブラッグ角 $\theta_B = 45^\circ$ の回折を用いれば、結晶は完全な直線偏光子（偏光能=1）として機能します。ただし高い偏光能を得るには、 θ_B がほぼ 45° になるように X 線の波長に対して結晶の種類や格子面を選ばなければなりません。たとえば、波長が1割短い X 線に対しては $\theta_B \approx 39^\circ$ となり、偏光能は0.92に低下してしまいます。そのため、広い波長範囲にわたって高い偏光度を必要とする用途にはあまり向いていません。結晶偏光子は、磁気散乱実験などで試料で散乱された X 線の偏光状態を測定する検光子として広く用いられています。

結晶偏光子には、グラファイト、LiF、Cu などのモザイク結晶がよく用いられます。これらの結晶ではブラッグ回折の反射幅が 0.1° 程度と比較的広く、反射率も数10%と高いため¹¹⁾、使いやすい素子です。

5.2 円偏光をつくる素子—透過型結晶移相子

硬 X 線領域では、直線偏光から円偏光を生成するために透過型移相子¹²⁾が広く使われています。透過型移相子には、シリコンやダイヤモンドなどの完全性の高い⁶⁾単結晶が用いられます。透過型移相子の模式図を Fig. 8 に示します。この図では、結晶を透過ラウエ配置で使っており、直線偏光を散乱面に対して 45° 傾けて入射しています。X

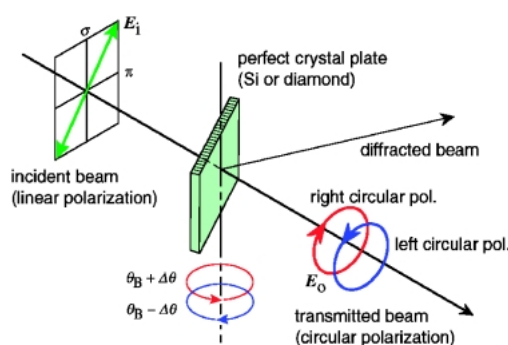


Fig. 8 An X-ray transmission crystal phase plate.

線が移相子結晶を透過する間に、 π 偏光と σ 偏光の間に位相差が生じます。結晶の角度を最適に調整することでこの位相差をちょうど $\pi/2$ に設定することができ、 $\lambda/4$ 板として働かせることができます。このとき透過光に円偏光が得られます。なお、実際のビームラインでは光源が水平直線偏光なので、回転軸が 45° 傾いた回折計に移相子結晶を乗せて使っています¹³⁾。この透過型の移相子は、X 線の光路が素子の前後で変化しないため、使いやすい素子です。平行度や単色性の高いアンジュレータ光に対して用いると高い偏光度が得られます。X 線の吸収が少ない薄い結晶を用いれば、高い効率で偏光状態の変換が可能です。たとえば、SPring-8 BL39XU でダイヤモンド結晶を移相子として使った場合、 $P_c = 95\%$ 以上の円偏光が常時利用できます。透過率は X 線のエネルギーと結晶の厚さによって変化しますが、適切な厚さの結晶を使った場合 $20 \sim 40\%$ 程度です。

透過型移相子の原理は、結晶内での X 線の多重散乱を考慮した動力学的回折理論で説明されます。この理論の詳細は文献¹¹⁾にゆずり、結果だけを示します。移相子結晶の角度と位相差の関係を Fig. 9 に示します。この曲線は以下に示す式(7)にしたがってプロットしたものです。横軸はブラッグ角から測った結晶の角度（オフセット角）を表

⁶⁾ 格子欠陥や結晶転移などが非常に少ない結晶。このような結晶ではその中を伝わる X 線の電場の位相関係が保存される。

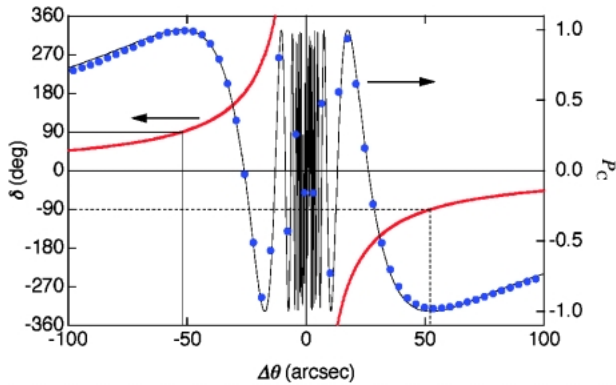


Fig. 9 Phase shift δ (red curve) produced by an X-ray phase plate, as a function of the offset angle $\Delta\theta$. The phase plate is a diamond (111) crystal of 0.67 mm thickness, used in the 220 Laue transmission case at 8.388 keV. Calculated (black curve) and measured (blue dots) values of degree of circular polarization P_C are shown.

しています。

動力学的回折理論によれば、オフセット角 $\Delta\theta$ と位相差 δ の関係は次のように表されます。

$$\delta = -\frac{\pi}{2} \left[\frac{r_e^2 \text{Re}(F_h F_{\bar{h}})}{\pi^2 V^2} \frac{\lambda^3 \sin(2\theta_B)}{\Delta\theta} \right] t \quad (7)$$

$$= -\frac{\pi}{2} \frac{At}{\Delta\theta} \quad (8)$$

ここで、 r_e は古典電子半径 ($= 2.8179 \times 10^{-5} \text{ \AA}$)、 F_h と $F_{\bar{h}}$ はそれぞれ hkl 反射と $\bar{h}\bar{k}\bar{l}$ 反射の結晶構造因子、 V は単位胞の体積(格子定数を a とすると、立方晶では $V=a^3$)、 λ は X 線の波長、 θ_B はブラッグ角を表します。 t は移相子中を通る X 線の光路長で、対称反射を用いた透過ラウエケースでは移相子結晶の厚さ t_0 と $t=t_0/\cos\theta_B$ の関係があります。式(7)は一見複雑に見えますが、係数をまとめて A とおくと、式(8)のようにとっても簡単な形になります。位相差は結晶の実効的な厚さ t に比例し、オフセット角 $\Delta\theta$ に反比例します。移相子に用いる物質、反射面、X 線の波長に対する依存性は係数 A に含まれています。

この式に実際の値を入れて計算してみましょう。移相子にはダイヤモンド ($a=3.567 \text{ \AA}$) の 220 反射を使うことにします。X 線のエネルギーを 8.388 keV (波長 $\lambda=1.48 \text{ \AA}$) とすると、ブラッグの式 ($\lambda=2a/\sqrt{2^2+2^2+0^2} \sin\theta_B$) から、220 反射のブラッグ角は $\theta_B=35.9^\circ$ となります。厚さ $t_0=0.67 \text{ mm}$ の結晶中を X 線が透過する長さは、 $t=0.67/\cos 35.9^\circ=0.83 \text{ mm} (=0.83 \times 10^7 \text{ \AA})$ です。220 反射および $\bar{2}\bar{2}0$ 反射に対する結晶構造因子を求めるには、文献¹⁴⁾から原子散乱因子 $f(K)$ の値を取ってきて、 $F_{220}=F_{\bar{2}\bar{2}0}=8f(K)=15.7$ となります¹¹⁾。すると、 $At=2.46 \times 10^{-4} \text{ rad}=50.7$ 秒という値が得られます。したがって、円偏光をつくるために $\pi/2$ の位相差をつけようとするなら、 $\Delta\theta=50.7$ 秒に

設定すればいいのです。

この条件は Fig. 9 から読みとることができます。 $\Delta\theta=-51$ 秒のときに $\delta=+90^\circ$ となり、右回りの円偏光が得られることがわかります。また、結晶をブラッグ角を中心に逆方向に傾けると、 $\Delta\theta=51$ 秒のときに $\delta=-90^\circ$ となり、このときには左回りの円偏光が得られます。また、オフセット角を $\lambda/4$ 板となる場合の半分の値、 $\Delta\theta=\pm 26$ 秒に設定すると、 $\delta=\mp 180^\circ$ の位相差が得られます。このとき移相子は $\lambda/2$ 板としてはたつき、入射光の水平直線偏光は垂直直線偏光に変換されます。

係数 A は X 線のエネルギー、すなわち波長によって変化しますが、オフセット角 $\Delta\theta$ を波長ごとに最適に調整することにより、透過型移相子は比較的広い範囲のエネルギーで $\lambda/4$ 板や $\lambda/2$ 板として機能します。このため、MCD や偏光 XAFS などエネルギー走査を必要とする分光測定に使われています。

5.3 高速偏光スイッチング

上で見たように、透過型移相子では、結晶の角度をわずかに数十秒変えるだけで円偏光の回転方向(ヘリシティ)を切り替えることができます。偏光状態の切り替えに必要なとされる動きが小さいため、高速な偏光スイッチングに向いています。また、結晶を周期的に振動させることにより左右の円偏光を交互(交流的に)に生成することができます。Fig. 10 に示すのは、高速偏光スイッチングに使われている、ピエゾ素子による移相子結晶ステージです^{13,15)}。このステージでは板バネを支点とした機構を使って、ピエゾ素子の伸縮を結晶の回転運動に変換しています。オフセット角の振幅は最大 ± 190 秒です。最高 100 Hz で偏光スイッチングを行うことができます。5.3 節で挿入光源を使った偏光スイッチングについて述べましたが、移相子によるスイッチングはこれらの方法よりもはるかに高速です。

さらに高速な偏光スイッチングの方法も開発されています。ピエゾ素子の代わりにガルバノスキャナーを用いて移相子結晶を振動させることにより、最高 2 kHz での偏光スイッチングが可能となっています¹⁶⁾。

高速で周期的な円偏光スイッチングと位相敏感検出法を組み合わせることで、円偏光変調分光法による非常に高精度な XMCD 測定法が開発されています¹³⁾。偏光切り替え周波数に同期した信号だけをロックインアンプで検出することで、測定の S/N 比が格段に向上します。SPring-8 BL39XU では円偏光変調法を用いて、通常の X 線吸収よりも 4 桁小さい XMCD 信号がエネルギー一点あたり 10 秒程度の測定時間で得られています。

5.4 移相子を使うときの注意点

5.4.1 X 線の角度発散やエネルギー幅の影響—最適な結晶厚さ

SPring-8 の BL39XU では、6 から 16 keV のエネルギー

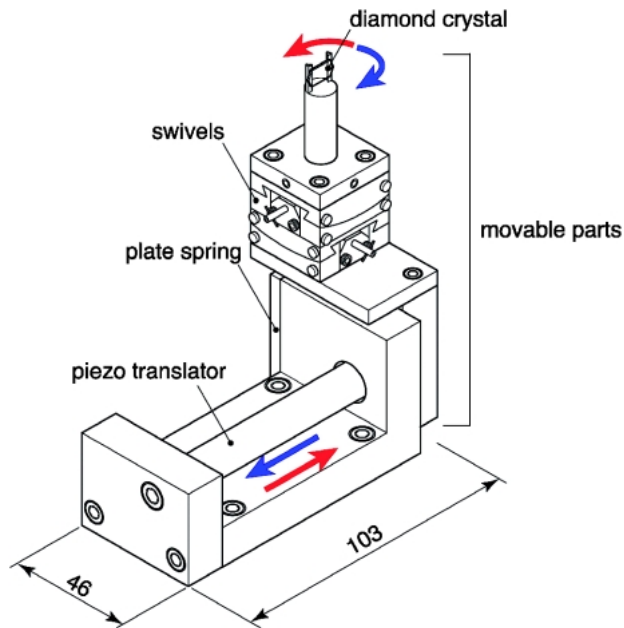


Fig. 10 A crystal oscillation stage driven by a piezo electronic transducer, used for fast helicity switching of circular polarized X-rays.

範囲で、0.45 mm から2.7 mm までの4種類の厚さのダイヤモンド結晶を使い分けています。低いエネルギーでは薄い結晶を使い、高いエネルギーほど厚い結晶にします。厚い結晶ではX線の透過強度が減少します。一枚の薄い結晶で全てのエネルギーをカバーできないのでしょうか。

式(7)によれば、X線のエネルギーが高く(波長が短く)なるとAの値は小さくなります。Aが小さくなった分、オフセット角 $\Delta\theta$ も小さくしていけば、同じ厚さtの結晶でどんなエネルギーにも対応できると思うかもしれませんが。しかし、そのやり方では高い偏光度のX線を得ることはできません。理由は、X線ビームに角度発散(アンジュレータ光で数 $10\ \mu\text{rad}$ 、偏向電磁石では数 mrad)やエネルギー幅(Si 111分光器で $\Delta E/E \sim 10^{-4}$)があるからです。式(7)、(8)や、Fig. 9に示した実線は、完全に平行な単色X線に対する位相差を示しています。X線が平行でなければ、実効的なオフセット角が発散角の幅でぼけることとなります。また、有限のエネルギー幅に対してはブラッグ角自体がぼけてしまいます。実際のX線に対して移相子を使うには、この角度の「ぼけ」を考慮し、位相差のカーブをある角度幅で平均することとなります。オフセット角に対する位相差の変化が、角度ぼけに対して十分ゆるやかならば偏光度は大きく変化しません。しかし、位相差の変化が急激ならば同じ角度ぼけに対して偏光状態の変化(多くの場合低下)は無視できなくなります。エネルギーが高い場合、あるいは結晶の厚さが薄い場合のほうが同じ位相差を与えるオフセット角での位相差の変化が急激になります。したがって、薄い結晶のほうが偏光度の低下が起こりやすいこととなります。Fig. 11に、同じ20秒の発散角

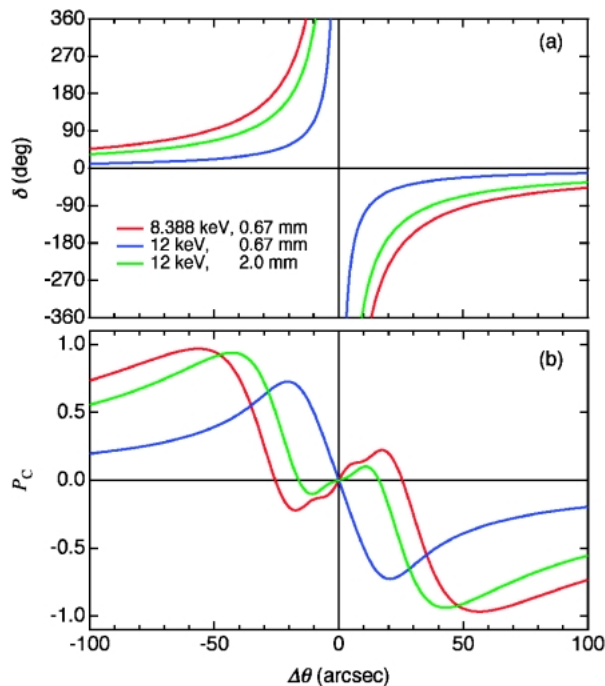


Fig. 11 (a) Phase shift δ for different X-ray energy and phase plate thickness. (b) Corresponding degree of circular polarization P_C for an X-ray beam with angular divergence of 20 arcseconds.

のX線に対して厚い結晶と薄い結晶で得られる円偏光度が異なる様子を示します。このような理由から、高いエネルギーほど厚い結晶が必要となります。

移相子結晶を2枚、あるいは4枚並べて使い、全体での移相量が $\pi/2$ になるような配置を使うことで、ビームの発散角やエネルギー幅の影響を打ち消し、薄い結晶でも高い偏光度を得る方法も考案されています¹⁷⁾。

5.4.2 左右円偏光の強度差

移相子で得られる円偏光は、右回りと左回りで強度が数%異なります。これは、ブラッグ角の低角側と高角側で結晶の透過率が異なるためです。測定データにこの強度差の影響が現れることがあります。円偏光の向きによって試料への入射X線強度が変わっても、イオンチェンバーなどで入射X線強度をモニターすれば問題ないはずですが、検出器の線形性が十分でない場合には注意が必要です。例えば蛍光モードでのXMCD測定で、蛍光X線検出器を高い計数率で使う場合には入射強度差の影響が測定スペクトルに表れ、XMCDスペクトルにXASスペクトルに似た形状のバックグラウンドが重なってしまいます。正しいデータを得るには、検出器の線形性が確保される計数率の範囲で使ったり、あらかじめ検出器の線形性を測定しておき、測定データを補正したりすることが必要です。移相子結晶を2枚使う配置¹⁷⁾ならば、1枚目の移相子と2枚目の移相子でこの強度差が打ち消し合うので、同じ強度の左右

円偏光を利用することができます。

6. おわりに

軟 X 線と硬 X 線領域での偏光制御を中心にご紹介してきました。偏光素子だけでなく、特定の偏光を発生する挿入光源も日々進歩しており、10年前と比べるといろいろな偏光状態の放射光を簡便に利用できるようになっています。それでも、Fig. 3 に示したように、偏光素子による制御が実用となっていないエネルギー領域が依然として存在します。1 keV から 4 keV の領域は短周期の多層膜あるいは Be などの軽金属による結晶回折によってカバーすることが提案されています。30 keV 以上の領域ではダイヤモンド移相子では結晶の厚さが非常に厚くなってしまいうため、ゲルマニウムを利用した報告があります。

500 eV から 1 keV の軟 X 線領域では MCD をはじめとした偏光利用が盛んに行われていますが、効率の高い移相子は今のところありません。もし軟 X 線領域で高効率の移相子が得られれば、硬 X 線と同様に数 10 Hz から 100 Hz 以上での高速偏光スイッチングが実現し、MCD 測定の高精度化に大きく貢献することでしょう。格子定数の大きな結晶による偏光素子の研究がすすんでおり、1 keV で利用できる直線偏光子、800 eV での移相子が開発されつつあります。

今後の展望としては、X 線自由電子レーザーやエネルギー回収型ライナックといった第 4 世代光源での偏光利用が注目されます。これらの高いコヒーレンスをもった光源で偏光利用が可能となれば、たとえばコヒーレント磁気散乱による磁区構造のイメージング、あるいは磁化反転過程でのダイナミクスを詳細に捉えられるものと期待されます。そのためには、非常にピーク輝度の高いパルス光に対して現状の結晶や多層膜を用いた偏光素子がうまく機能するかどうかの検討が必要です。新しい原理による偏光素子の開発が必要になるかもしれません。第 4 世代施設での偏光アンジュレータの開発やその偏光特性の評価ももちろん重要になるでしょう。

MCD や偏光 XAFS がその好例であるように、既存の測定に偏光を組み合わせることで、新たな情報が得られる可能性があります。偏光を積極的に利用することは、今後も放射光実験での重要なテクニックであり続けることでは

う。本稿を読まれて、いま取り組んでいるテーマに偏光を組み合わせてみたらどうだろうか、と考えていただけるなら大変うれしく思います。

お願い

本シリーズでは、初心者ユーザーが陥りやすい誤りやビームライン担当者の貴重な経験談を募集しております。最終回でご紹介したいと考えております。また、本シリーズに関してご意見・ご要望がございましたら編集担当 (SPring-8 JASRI 大橋治彦/hohashi@spring8.or.jp, KEK-PF 平野馨一/keiichi.hirano@kek.jp) までどうぞお便り下さい。

参考文献

- 1) 谷田 肇, 渡辺 巖: 放射光 **19**, 159 (2006).
- 2) 小出常晴: 新しい放射光の科学, 4 章, p. 80 (講談社, 2000年).
- 3) M. Born and E. Wolf: Principles of Optics (Cambridge University Press, 1999) 7th ed.
- 4) 原 徹: 放射光 **13**, 3 (2000).
- 5) T. Namioka: *Spectroscopy in Optical Technology* **38**, 225 (1989).
- 6) T. Hirono, H. Kimura, Y. Tamenori, Y. Saitoh, N. N. Salashchenko and T. Ishikawa: *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenomena* **144-147**, 1079 (2005).
- 7) A. Agui, A. Yoshigoe, T. Nakatani, T. Matsushita, Y. Saitoh, A. Yokoya, H. Tanaka, Y. Miyahara, T. Shimada, M. Takeuchi, T. Bizen, S. Sasaki, M. Takao, H. Aoyagi, T. P. Kudo, K. Satoh, S. Wu, Y. Hiramatsu and H. Ohkuma: *Rev. Sci. Instrum.* **72**, 3191 (2001).
- 8) 室隆桂之: 放射光 **18**, 238 (2005).
- 9) T. Hirono, H. Kimura, T. Muro, Y. Saitoh and T. Ishikawa: *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenomena* **144-147**, 1097 (2005).
- 10) T. Hirono and H. Kimura: *The 8th International Conference on X-ray Microscopy, 26-30 July 2005, Himeji, Japan.*
- 11) 菊田惺志: X 線回折・散乱技術上 (東京大学出版会, 1992年).
- 12) 平野馨一: 放射光 **11**, 238 (1998).
- 13) 鈴木基寛: 放射光 **13**, 12 (2000).
- 14) Eds. A. J. C. Wilson and E. Prince: *International Tables for Crystallography Volume C, 2nd ed.*, p. 549 (Kluwer Academic Publishers, 1999).
- 15) K. Hirano, T. Ishikawa, S. Koreeda, K. Fuchigami, K. Kan-zaki and S. Kikuta: *Jpn. J. Appl. Phys.* **31**, L1209 (1992).
- 16) M. Suzuki, N. Kawamura and T. Ishikawa: *Rev. Sci. Instrum.* **74**, 19 (2003).
- 17) 沖津康平, 上工地義徳, 佐藤公法, 雨宮慶幸: 放射光 **16**, 40 (2003).