

シリコン歪み結晶による X 線の巨大横すべり現象

香村芳樹 理化学研究所播磨研究所 〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
 澤田 桂 理化学研究所播磨研究所 〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
 石川哲也 理化学研究所播磨研究所 〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

要旨 我々は、シリコン結晶の X 線透過像を観察し、結晶中の原子レベルのミクロな格子歪みによって、X 線が巨大な横すべり現象を引き起こすことを発見した。この結果は、2006年に、X 線動力学的回折理論におけるベリー位相効果として予言されていた X 線巨大横すべり現象の実証となるものである。この巨大横すべり現象のメカニズムを説明し、実証実験について解説する。

1. はじめに

光が曲がる現象としては、屈折現象がよく知られており、身近な例としては、お風呂で手足が近づいて見えることや、虫メガネなどが挙げられる。ただ、これらは目に見える光の場合の屈折であって、X 線の屈折現象となると普段はあまり馴染みがない。例えばレントゲン撮影の際には、背中から当てた X 線は人体をほぼ直進して胸から透過するわけで、途中で曲がって足から出てくることはない。このように、X 線の屈折の大きさは非常に小さいため、X 線を曲げることは一般には難しい。本稿で紹介するのは、そのような屈折現象とは違って、X 線を大きく曲げることのできる、「横すべり現象」である。なお、用語について、本稿では光が曲がる現象を、メカニズムの違いによって屈折現象と横すべり現象とに分けて扱うが、文献によっては光が曲がる現象を総称して屈折と呼ぶ場合もある。

屈折と横すべりの違いを **Fig. 1** に示す。一般には屈折と横すべりは同時に起こりうるものである。ここではそれらの違いをはっきりさせるために、便宜上独立に描いている。まず、屈折 [**Fig. 1(a)**] は、試料の界面や、不均一な試料の内部において、波面の向き（図では、顔の向きに対応する）が変わることで、進行方向が変わって光が曲がる現象である。顔が向いている方向に進むのは、普段私たちが前を向いて歩いて進むのと同じ要領なので、理解しやすいだろう。**Fig. 1(a)** は、不均一媒質に垂直入射して、試料内部で光が屈折する様子を示している。このとき、光が試料の界面に到達すると、顔の向きの方へ伝わる。一方、横すべり [**Fig. 1(b)**] は、分散をもつ媒質（後述）において生じる現象であり、文字通り顔の向きは変わらずに、進行方向だけが違って光が曲がる現象である。たとえるなら、横に動く歩道の上を歩いていて、自分が歩く方向とは

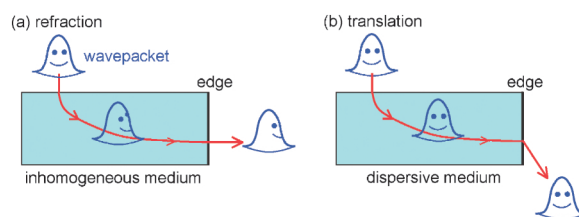


Fig. 1 Schematic illustration of wavepacket propagation with (a) the refraction in a non-uniform medium and (b) the translation in a dispersive medium. The face mark on the wavepacket corresponds to the orientation of its wave vector.

違う方向へ流されてしまうようなイメージである。横すべり現象は、伝搬する媒質中での軌跡を見るだけなら屈折現象とは区別しにくい、界面において両者の振舞いが大きく異なる。横すべり現象の場合には、光が試料の界面に到達した際に、顔の向きの方へ伝わるため、屈折の場合とは、仮に物質内での経路が同じだとしても、全く異なる方向へ伝わる。

ただし、**Fig. 1** に示したのは極端な例であり、X 線では物質との相互作用が小さいため、X 線でマクロスケールの現象を起こすには、何らかのメカニズムで光学効果を増幅する必要がある。そのような増幅機構を提唱したのが、澤田らによる2006年の理論であった^{1,2)}。X 線では屈折の大きさは非常に小さく、屈折によって X 線を曲げることは困難だが、この理論によると、歪み結晶中の横すべり量は屈折の大きさに反比例し巨大となる。具体的には、歪み結晶に対してブラッグ条件から僅かに外れた角度で X 線ビームを入射させると、歪み量の100万倍にも及ぶマクロスケールで X 線の横すべり現象が起こる。我々は、2008年よりこの理論予言の実証実験を行い、X 線の巨大横すべり現象を観測する事に成功した³⁾。本稿では、この現象の理論的背景と、実験結果について解説する。

2. 歪み結晶中の X 線波束伝搬の動力的回折理論

歪み結晶における X 線の動力的回折理論には非常に長い歴史があり⁴⁻⁹⁾、例えば Takagi-Taupin 理論^{4,5)}では、数値計算によって X 線の伝搬を議論する。どの理論も、Maxwell 方程式を何らかの形で解くことには変わりはなく、ここで説明するベリ一位相理論も例外ではない。しかし、今回の理論では、X 線の伝搬する軌道の形が数値計算を必要とせず解析的に求まるため、定性的にも定量的にも現象を理解するのに適している^{1,2)}。さらに、後述するように、ベリ一位相という概念を導入しているため、X 線光学以外の分野（物性物理など）との類推ができることも重要である。

本研究では歪み結晶を取り扱うが、まずは歪み無しのいわゆる完全結晶の中を X 線が伝搬する場合について考え、歪みが出た場合に伝搬の様子がどう変更を受けるかみる、という手順でそれぞれ定性的・定量的に考える。

完全結晶では、原子が周期的に配列しており、X 線にとっては周期的なポテンシャル分布として感じられる。従って、結晶中を伝わる X 線は、周期ポテンシャルで散乱（ブラッグ散乱）された波どうしの干渉のために、波数の分布が入射する前の X 線のそれとは異なるものとなる。このように、入射した X 線のエネルギーと、結晶中を伝わる X 線の波数との関係を分散関係と呼び、それを、Fig. 2(a)のように図示したものを分散曲線と呼ぶ。ブラッグ反射が起きる領域付近での分散曲線は、ブラッグ角をまたぐ角度で二つに分かれる [Fig. 2(a)]¹⁰⁾。このとき、X 線の

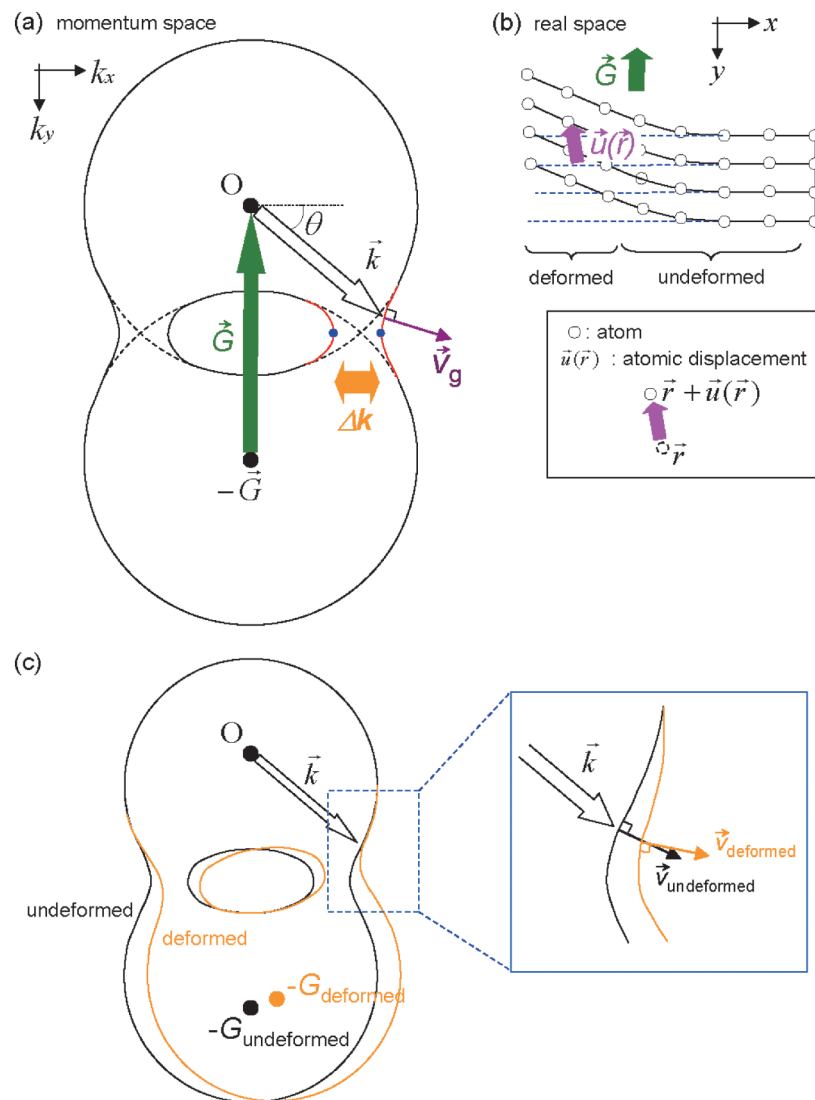


Fig. 2 (a) Dispersion curve on which the x-ray propagations are allowed on a two-dimensional x-ray wave-vector space diagram. (b) Schematic diagram of a deformed crystal. The deformation is due to an atomic displacement from \vec{r} to $\vec{r} + \vec{u}(\vec{r})$. (c) Dispersion curves for the deformed and the undeformed (perfect) crystals and the group velocities.

伝わる向きは群速度として表され、分散曲線の法線方向を向き、入射 X 線の波数ベクトルの向きとは異なる。また、逆にこの分散関係の図を見ると、二つに分かれた領域の間には結晶を伝わる X 線が存在せず、入射した X 線は全て反射されており、それがブラッグ反射だと言える。

次に、結晶に歪み加わった場合 [Fig. 2(b)] を考える。結晶歪みの大きさは小さく、歪みは結晶面の局所的な傾きとしてみなせるものとする。結晶面の傾き角が完全結晶のロッキングカーブ幅より小さい程度の場合には、Fig. 2(c) のように逆格子ベクトルが完全結晶の $\vec{G}_{undeformed}$ から、歪み結晶の $\vec{G}_{deformed}$ へかわることで、分散関係も傾くとしてよい。このとき、分散曲線の法線方向の変化を見てみると、完全結晶の場合に比べ、群速度に逆格子ベクトル方向にずれた成分が加わる。この群速度のずれが、横すべりの原因となる。

以上で定性的には横すべり現象の見当がついた。定量的な説明は、理論の結果³⁾で補うことにする。歪み結晶中では、時刻 t における波束の重心の位置 $\vec{r}_c(t)$ は、以下の式(1)に従って運動する。

$$\vec{r}_c(t) = \vec{v}_g t + \vec{G} \left[\frac{1}{2k^2} \vec{G} \cdot \vec{u}(\vec{r}_c(t)) \right] \frac{k}{\Delta k} \quad (1)$$

ここで、 \vec{v}_g , \vec{G} , $\vec{u}(\vec{r})$ はそれぞれ、結晶中の X 線波束の群速度、結晶の逆格子ベクトル、位置 \vec{r} における歪み量 [Fig. 2(b)参照] を表す。また、 $k = |\vec{k}|$ は波数、 Δk は分散関係におけるギャップの大きさ [Fig. 2(a)参照] を表す。式(1)において、右辺第一項が完全結晶中の分散関係に従う群速度の項である。右辺第二項が結晶歪みによる補正を表す項で、逆格子ベクトルの方向を向いており、前段落での定性的な議論と確かに同じ結果を与えている。結晶歪みの影響は、分散とも関連して波束の運動に現れることがわかる。この補正項は、実空間と波数空間にまたがる位相空間でのベリー位相¹¹⁾の効果として表されるもので、理論的には興味深いところだがここでは触れず、詳細は文献^{1,2)}にゆずる。式(1)の補正項で特に注目すべき点は、歪み結晶中での X 線の横すべり量は歪み量 u だけでなく、 $k/\Delta k \sim 1/\delta$ にも比例することである (δ は屈折率の 1 との差)^{1,2)}。つまり、屈折の大きさに反比例する。この因子は、例えば、本研究で使用したシリコン(400)結晶に 15 keV の X 線を照射する場合には、 $k/\Delta k$ は 50 万程度にも及び、X 線波束は結晶歪み量 u の 10 万倍オーダーの横すべりを示すことが予想される。例えば、10 nm の歪み量により、1 mm 程度の巨大な X 線の横すべりが生じるという驚くべき効果が生じることになる。

Fig. 3(a) のように、入射側からみて格子面が凹面に歪んだ結晶に対して、様々な波数をもつ波束が混在した X 線

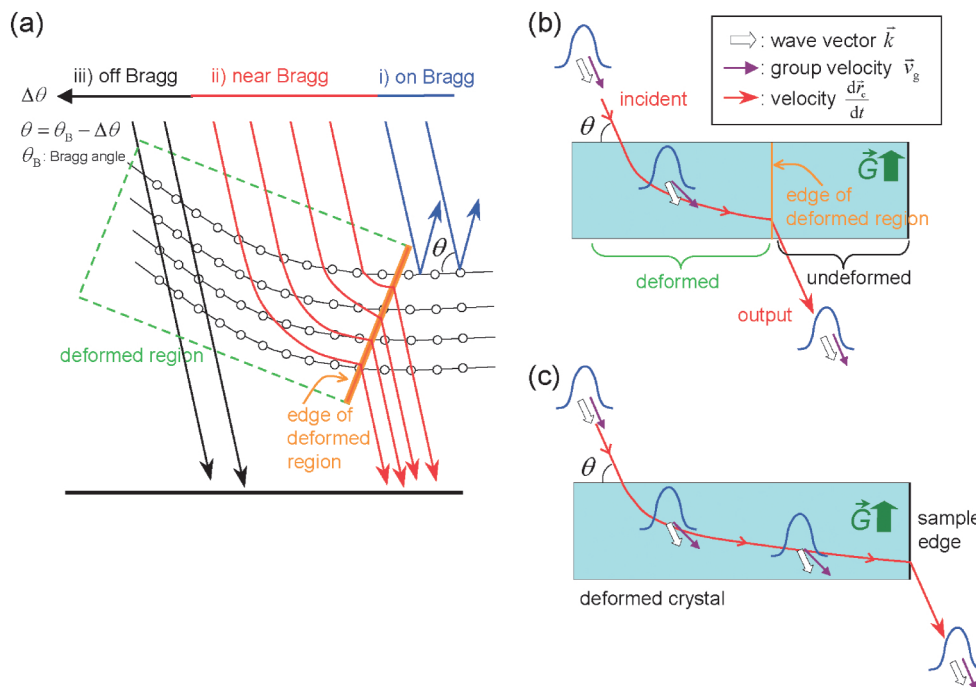


Fig. 3 (a) The positional dependence of the x-ray trajectories through the deformed crystal. The translation of x-ray wave packet occurs when the x-ray wave packet passes through the deformed region in the crystal (green dotted box) with the incident angle nearby the Bragg angle. (b) Schematic of one of the trajectories with the x-ray wave vector and the group velocity. (c) A special case of (b) where the edge of the deformed region is identical to the sample edge.

ビームを照射する場合を考える。格子面に対する波束の入射角 θ とブラッグ角 θ_B との関係によって、次のような三種類の現象が生じる。i) ブラッグ条件を満たす波束の場合 ($\theta = \theta_B$)、全反射する。ii) ブラッグ角から少し外れた低角側で入射した波束で ($\theta = \theta_B - \Delta\theta$)、 $\Delta\theta < \omega$ (ω : 完全結晶のロッキングカーブ幅) を満たす場合、Fig. 3(a) で右の格子面ほど入射 X 線に対する視斜角が大きくなっている。このため、結晶中で X 線波束が斜めに伝わるに従い、ブラッグ反射条件に徐々に近づき、X 線の軌道は結晶面に沿った方向に傾いてゆく。歪みのない領域に到達すると、横すべりしなくなり、外に出射する。iii) $\Delta\theta \gg \omega$ を満たす場合、ブラッグ角から大きく外れると、X 線にとっては結晶構造はないものと同じで、直進する。

波束 1 つに着目して、波数と群速度と軌道の関係を模式的に表すと、Fig. 3(b) のようになり、特に歪み領域と無歪み領域との境界線が結晶中には無い場合には、その境界線は結晶縁と一致し、結晶縁まで横すべりする結果、Fig. 3(c) のような軌道になる。

3. 実験手法

この X 線巨大横すべり現象は、実験としては極めて単純な方法で観察できる。まず最初に、我々が行った実験のセットアップと、試料結晶について述べる事にしよう。

我々は、100 ミクロン厚のシリコン単結晶 (大きさ 14 mm × 11 mm) を用意した。そして、この結晶の (400) 面、

Bragg ケースの対称反射を利用し、入射角をブラッグ角 (約 18 度) 近傍の角度にセットして、透過 X 線を観察した [Fig. 4(a)]³⁾。X 線像の観察には、蛍光体による可視光変換型 X 線カメラ (ピクセルサイズ 4.6 ミクロン) を用いた。SPring-8 のアンジュレーター放射光 (BL19LXU) と結晶分光器で得られた、エネルギー 15 keV、ビーム幅 0.2 mm の X 線を使用した。

シリコン単結晶は、対角の二点をワックスで固定し、反らせることで大局的に歪みを与えた。反りによる歪みは小さく、裸眼では見えない程度とした。与えた歪みの大きさを正確に求めるため、可視光白色干渉計を使い、表面形状を計った [Fig. 4(b)]。BS1, BS2 は、X 線ビーム照射スポット二か所を表し、これに沿った結晶の高さプロファイルを Fig. 4(c) の赤線で示した。以下では、表面と結晶面が平行と仮定する。表面プロファイル (赤線) を直線近似し局所的な格子面を反映しているとし、BS1 付近の局所的な格子面からの歪み量 (u) が表面プロファイルと直線近似との差 (u_{surface}) で表されるとして、Fig. 4(c) の青線で示した。BS1 から結晶縁まで距離 5 mm の間で 0.2 μm 弱の歪み量が実現されている事が分かる [Fig. 4(c)]。

4. 実験結果

我々は、歪み結晶への X 線照射位置を変えながら、X 線画像検出器による透過 X 線像に横すべり X 線の兆候が見られるか調べてみた。すると、Fig. 4(b) の BS1, BS2 と

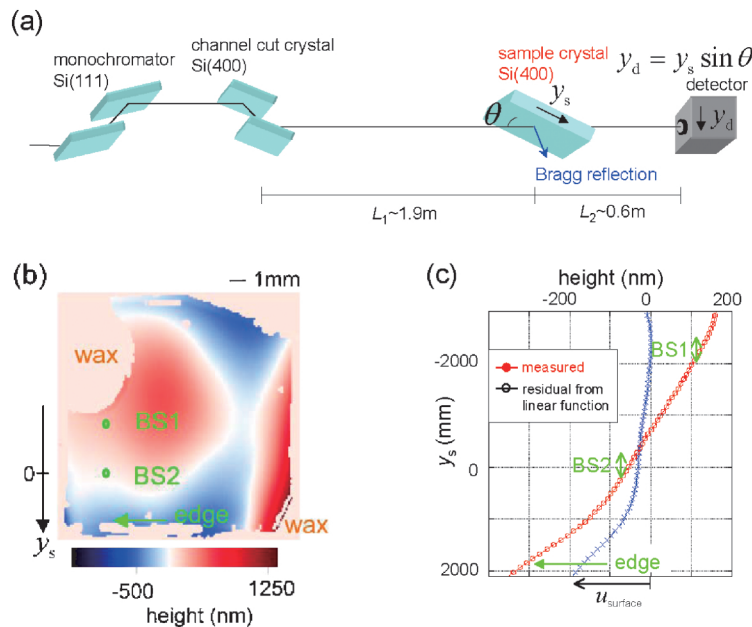


Fig. 4 (a) Schematic diagram of the experimental setup. (b) Height distribution at the surface of the sample crystal measured with a Fizeau visible interferometer. Green ovals show the size (in FWHM) and the positions of the illuminated x-ray beam spots (BS1 and BS2). (c) Surface height distribution along BS1-BS2-crystal edge (red curve). The crystal plane is assumed to be parallel to the linear fit to the measured surface height distribution. The deviation of the red line from a linear fit at BS1 (u_{surface}) is represented by a blue curve. The amount of the deformation at the crystal edge (u), thus estimated, was approximately 0.2 μm .

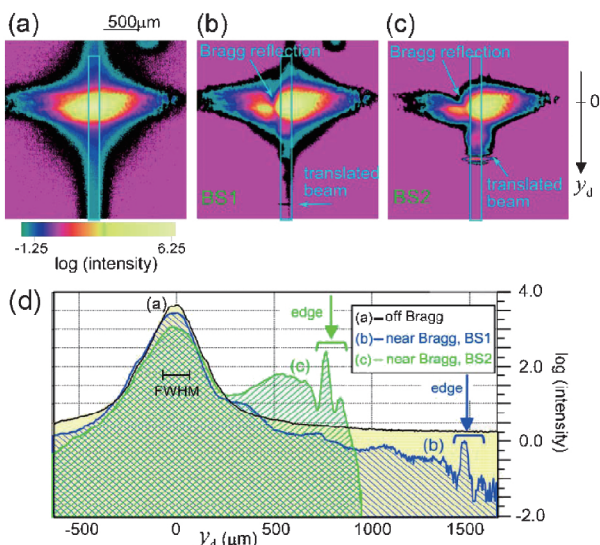


Fig. 5 X-ray transmitted images with the incident angle (a) offset by 30 arcseconds from the Bragg angle, (b & c) near the Bragg angle with the illuminated positions at BS1 (b) and BS2 (c). (d) Vertical intensity profiles along the blue boxes, where the black, blue and green data correspond to the data of Fig. 5(a), (b) and (c).

いった点に X 線を照射した時に、通常の X 線透過位置から大きくずれた位置に透過 X 線が観察される現象が見つかった。

まず、入射角をブラッグ角から大きく外した場合（ブラッグ角から30秒角にセットした）には、単一ピークしか観察されず、入射 X 線の分布とほとんど変化が見られなかった [Fig. 5(a)]。一方、入射角をブラッグ角近傍にセットした場合には、透過した X 線の強度分布が劇的に変化した。Fig. 5(b), (c) は、この条件で、照射位置を BS1, BS2 と変えた時の透過像だが、下方に構造が伸びていて、その末端にライン状のピークが観察されている。このピークは、入射 X 線のピークからはるかに下方に位置している。ライン状のピークは、結晶全体を垂直方向に動かすと、移動量と同じだけ、垂直方向に移動し、位置関係から、結晶縁から出射してラインを形成したものと断定できる。後から述べる様に、照射位置の BS1 や BS2 から結晶縁まで移動するメカニズムとしては、横すべり現象以外には考えにくい。

Fig. 5(b, c) で下方に伸びた X 線分布に沿って細長い領域を選び、上記三通りで垂直プロファイル調べた。黒線が Fig. 5(a)、青線が Fig. 5(b)、緑線が Fig. 5(c) から得られた垂直プロファイルである。照射位置が BS1 の場合、検出器上で元ビームから1.5 mm 離れた所にライン状のピークが生じている。斜入射角より結晶中の X 線の移動量は 5 mm、つまり試料結晶の厚みの50倍程度に達している。X 線は、ほぼ結晶表面に沿って伝搬した事になる³⁾。

X 線は結晶に入って、入射方向からブラッグ角（18度）程度向きを変えて、ほぼ結晶表面に沿って伝わり、結晶縁

には、ほぼ直角に当たったと推測される。界面に直角に当たった X 線はほとんど屈折を起こさないとはいえない。しかし、0.6 m も下流の検出器で、ほとんど高さを変えずに検出されている。従って、結晶から出た後、再び、入射光に平行に伝搬した事が示唆されている。つまり、X 線は、結晶に入ってからと、出る際の二度にわたって約18度という大きな角度で向きを変えた事になる [Fig. 3(c)]。硬 X 線をこれだけ大きな角度だけ偏向させるのは、屈折現象では不可能であり、横すべり現象によるものだと結論できる。実験で用いたシリコン結晶の歪み量では、X 線の横すべり量の理論値は 2 cm 以上となるが、実際には横すべりの途中で試料の端に到達して横すべりが止まるので、5 mm 程度の横すべり量に対応するピークが実測されたと考えられる。

試料の縁に達した横すべり X 線の幅は、画像検出器（0.6 m 下流）で計測したところ0.04 mm で、14秒角以下の角度発散が示唆された。全反射を伴わないため低角度発散の出射ビームが得られた点も興味深い。

5. まとめと将来展望

本稿では、2006年に理論的に予言された X 線の横すべり現象について紹介し、実際に、原子レベルのミクロな結晶格子の歪みによりミリオーダーの X 線の横すべり現象を観察した実証実験について解説した。今回の実験では、理論で予言された横すべり現象の検証を第一の目的としたため、まずはミリオーダーの横すべりを観測したに留まったが、より大きな試料を使うとさらに大きなセンチオーダーの横すべりも期待できる。このような X 線の巨大な光学現象は、媒質内の X 線の光路を大きく制御する光学素子の可能性を示唆する。また、この横すべり現象は、1ピコ秒程度の高速度応答を起こす光学素子、実験手法に利用できるのではないかと考えている。出来れば次世代光源 X 線 FEL や ERL 等で利用される技術に応用したい。また、基礎物理学的には、新しいベリー位相効果が可視化されたという点が興味深い。これまで、波束の運動方程式におけるベリー位相効果は、量子ホール効果¹²⁾やトポロジカル絶縁体^{13,14)}などの電子物性で議論されることが多かった。X 線光学で観測されたのは本研究が初めてであり、分野をまたいだ新しい展開が期待される。

参考文献

- 1) K. Sawada, S. Murakami and N. Nagaosa: *Phys. Rev. Lett.* **96**, 154802 (2006).
- 2) 澤田桂, 放射光 **20**, 367 (2007).
- 3) Y. Kohmura, K. Sawada and T. Ishikawa: *Phys. Rev. Lett.* **104**, 244801 (2010); B. W. Adams: *Physics* **3**, 50 (2010).
- 4) D. Taupin: *Acta Crystallogr.* **23**, 25 (1967).
- 5) S. Takagi: *J. Phys. Soc. Jpn.* **26**, 1239 (1969).
- 6) N. Kato: *J. Phys. Soc. Jpn.* **18**, 1785 (1963), **19**, 67 (1964).

- 7) J. Gronkowski and C. Malgrange: *Acta Cryst.* **A40**, 507 (1984).
 8) A. Authier: *Dynamical Theory of X-ray Diffraction*, Oxford University Press (2001).
 9) H. Yan et al.: *J. Appl. Cryst.* **40**, 322 (2007).
 10) 菊田惺志: X 線回折・散乱技術〈上〉, 東京大学出版会.
 11) M. V. Berry: *Proc. R. Soc. A*, **392**, 45 (1984).
 12) D. J. Thouless, et al.: *Phys. Rev. Lett.* **49**, 405 (1982).
 13) C. L. Kane and E. J. Mele: *Phys. Rev. Lett.* **95**, 146802 (2005).
 14) B. A. Bernevig and S. C. Zhang: *Phys. Rev. Lett.* **96**, 106802 (2006).

● 著者紹介 ●

**香村芳樹**

理化学研究所 播磨研究所
放射光科学総合研究センター
放射光イメージング利用システム開発ユニット
ユニットリーダー
E-mail: kohmura@spring8.or.jp

専門: コヒーレント X 線イメージング

【略歴】

1994年東京大学大学院理学系研究科物理学専攻博士課程修了。博士(理学)。
1994年理化学研究所研究員, 2010年より現職。

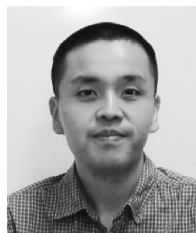
**石川哲也**

理化学研究所 播磨研究所 所長
理化学研究所 播磨研究所 放射光科学
総合研究センター センター長
E-mail: ishikawa@spring8.or.jp

専門: X 線干渉光学

【略歴】

1977年東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻, 1982年博士(工学), 1983年高エネルギー物理学研究所助手,
1989年東京大学工学部物理工学科助教授, 1996年理化学研究所主任研究員を経て, 2010年4月より現職。

**澤田 桂**

理化学研究所 播磨研究所
放射光科学総合研究センター データ処理系開発チーム
特別研究員
E-mail: sawada@spring8.or.jp

専門: 光学理論

【略歴】

2007年東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻博士課程修了。博士(工学)。
2007年理化学研究所基礎科学特別研究員, 2010年同研究員を経て, 2011年より現職。

Enhanced translation of x-ray wavepacket inside silicon deformed crystal

Yoshiki KOHMURA RIKEN, SPring-8 Center
1-1-1, Kouto, Sayo-cho, Sayo-gun, Hyogo 679-5148 Japan
Kei SAWADA RIKEN, SPring-8 Center
1-1-1, Kouto, Sayo-cho, Sayo-gun, Hyogo 679-5148 Japan
Tetsuya ISHIKAWA RIKEN, SPring-8 Center
1-1-1, Kouto, Sayo-cho, Sayo-gun, Hyogo 679-5148 Japan

Abstract We report an enhanced translation of x-rays over huge distances due to an atomic displacement in a silicon crystal. This result supports a prediction in 2006 by the dynamical diffraction theory including a Berry-phase effect. We present the mechanism of the gigantic translation and its experimental verification.