



Title	白色X線による結晶中の干渉現象の研究
Author(s)	大川, 時夫
Citation	大阪大学, 1985, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/1423
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

白色X線による結晶中の干渉現象の研究

1984

大川時夫

白色X線による結晶内電磁場の研究のはじまりは、今世紀初めの画期的な、LaueによるX線回折現象の発見にさかのぼる。以来、数多くの実験的、理論的研究が、物理学、化学、物質科学の分野で遂行され、現代の物質文明の基石礎を固めて来た事は良く知られている。X線を用いてもたらされる物質情報は非常に広範囲にわたるものであるが、就中、物質の原子的構造に関する情報はその最たるもので、それは主にX線回折法とそれに基石礎を置いた技術によりもたらされたものである。

未知の結晶性物質にX線を照射すると、透過X線量により物質密度に関する情報もたらされる事は良く知られているが、その外に結晶の原子総面内の電子密度にもとづく情報を持った回折X線が、その結晶面の方位にもとづく特定の方向へ散乱される。この回折散乱X線の散乱角と強度を綿密に測定することによって、結晶内電子密度分布を立体的に再構成し、結晶構造乃至は分子構造を決定する方法は今日非常に発展した。電子計算機を組合せた、X線回折計は物質構造を直接画像に書き出す様な事も現在では可能にいつある。可視光の場合のごとくにX線を屈折させて結像させるレンズは存在しないが、このX線回折技術そのものは、まさに物質構造顕微鏡の広義のレンズと等価であると言われている。これを可能にしたのは、X線の波長が物質の結晶構造の周期と大体同程度である 1\AA 前後の場合に干渉現象が生じるからに外ならない。一方、Abbeによって明らかになった光学顕微鏡の分解能の限界は試料を照射する光の波長と同程度であることが示された。これも光の回折によるほけから生じると言える。X線を用いた顕微鏡は、従って原理的には、 $\sim 1\text{\AA}$ の分解を持って不自然ではない。可視光或は紫外光を使った光学顕微鏡の分解能の限界が、 $\sim 0.2\mu\text{m}$ であることは良く知られている。もしも同じ

電磁波であるX線を照射系に用いれば、屈折系を構成することが出来ない事は承知の上で、上述のX線回折技術系を直接用いない、異なった形のX線顕微鏡金鏡が出来る可能性もある。

この期待を担った国際会議が1956年に英国 Cambridge で行われた。物質の構造を直視しようとする人間の意欲、特に半導体結晶の内部に於ける情報を得ようとする意欲が働いていた事は、その後20年の歴史的発展が示している。Cambridge 会議ではいろいろな型式のX線顕微鏡法が論ぜられたが、それらの中主なものは、鏡面の全反射現象を用いて結像させようとするリフレクション法、試料と写真乾板を密着させ1:1のX線透過像を記録するコンタクト法、臭X線源から発散するX線を用いて、拡大投影を行うポイントプロジェクション法の三つであった。

歴史の古いものはコンタクト法でX線の透過性を利用したラジオグラフィであり、分解能は写真乳剤中の感光銀粒子の粒状性、サイズに依存していた。リフレクション法は屈折レンズに代るものであるが技術的困難も多く応用も限られたものであった。一方、ポイントプロジェクション法はX線の光としての性質を利用するもので顕微鏡法と称せられるのにかかわらず、いろいろの応用可能性があった。その後20年近くの間、プロジェクション法を基礎として数々の分野が生れて来ている。回折顕微鏡法としての応用は、結晶のトポグラフィとか微小試料のX線回折計へと発展し、電子ビーム励起による微小臭X線光源の応用はX線分光学的な方法と組合されて、X線マイクロアナライザーへ、又試料から放出される二次電子を利用する走査型電子顕微鏡金鏡などへと発展した。透過X線を利用した物質の密度の立体観察の方法は、X線CT(コンピュータトモグラフィ)へと発展して来た。

上述のごとき歴史的流れの中で、光学顕微鏡より分解能が高く、物質分析能力の有る X 線顕微鏡を建設する計画が立てられた。投射型 X 線顕微鏡の試作が行われ、数多くの応用研究、試料の観察が行われた。像解釈にかかわる問題には未解決問題がいろいろと見出された。

本研究は試作にかかわる問題の解明並びに応用上の問題の解決の目的で行われて来た。

像解釈にかかわる理論的研究は、依然着手した段階に在り、完成した体系を見るに至っていないが、原理的な面で展望が広がって来た時勢に在る。ここでは従来の古典的 X 線回折理論も包含する新しい理論が展開される見通しが見られる。

従って、本論文の前半は装置製造に関する既発表の記事と装置の応用により得た実験的記事、後半は撮影された試料の像解釈にかかわる従来理論の不足を補う形の理論的考察の記事から成っている。実験と理論にかかわる仕事であるが一貫して追及されるものは白色 X 線による電磁波の干渉現象である。従って本論文は次に示す六章から成立している。

第 1 章 X 線顕微鏡学の歴史と X 線回折理論の史的展望

第 2 章 X 線顕微鏡の試作

第 3 章 白色 X 線を用いた回折顕微鏡法による結晶の観察

第 4 章 拡大ラウエ回折法の幾何学と回折像コントラスト

第 5 章 相対論的量子力学による白色 X 線干渉現象の考察

第 6 章 新 X 線球面波理論

第 1 章は X 線顕微鏡法の歴史的発展を明らかにし、本研究論文の座標系を明確にする。又、研究の

過程で生れたX線干渉現象の基本的問題に関する疑問を探究する爲に従来のX線回折理論を見なおした結果を記す。

第2章. Coslett-Nixon型X線顕微鏡の試作における諸問題と将来展望を記す。

第3章. 白色散乱X線による拡大ラウエ回折法で、酸化モリブデン、銅ホイスカー、Si単結晶などの具体的応用を行い、実用的活用法を示した。又、その中で生れた問題点にも論及する。

第4章. 拡大ラウエ回折像の写像の幾何学について論じ、又、回折像コントラスト計算^法を示す。

第5章. 白色X線の干渉現象を原子的尺度でとらえ、干渉の共鳴過程、並びにX線偏光面の混合について論じる。

第6章. 高木理論を基礎とし、任意の歪んだ結晶状態に適用出来る球面波X線回折理論の展開をした。

目 録

緒 論	前付 1 ~
第 1 章 X線顕微鏡学の歴史とX線回折理論の史的展望	1
1-1 X線顕微鏡学の歴史	1
1-1-(1) 顕微鏡観察へのX線の導入	2
1-1-(2) Contact Microradiography	4
1-1-(3) Reflection X-Ray Micrography	6
1-1-(4) Projection with X-Ray	7
1-1-(5) Scanning Method	8
1-2 X線回折理論の史的展望	9
1-2-(1) 古典X線回折理論の確立	12
1-2-(2) X線回折の古典理論の展開	14
1-2-(3) 非相対論的量子力学による回折理論	22
1-2-(4) 量子電磁力学の展望	24
1-2-(5) X線回折理論研究の文献	25
1-3 結 語	26
第 2 章 X線顕微鏡の試作	32
2-1 緒 言	32
2-2-(1) 電子銃(1)	33
2-2-(2) 電子銃(2)	38

2-3	電子光学系	41
2-4	電源装置	49
2-5	電子ビーム軸合せ装置	57
2-6	X線源サイズの測定	59
2-7	X線陰影拡大像	63
2-8	X線顕微鏡用の試料の取扱	67
2-9	試料の微動装置とフィルムカート	68
2-10	X線像撮影用宇宙材料(陰影拡大用)	73
2-11	X線顕微鏡の問題点と将来展望	74
2-12	結 語	75
第3章	白色散乱X線を用いた回折顕微法による結晶の観察	76
3-1	緒 言	76
3-2	拡大ラウエ法	76
3-3	西酸化モリブデン結晶の観察	84
3-4	銅ホイスター結晶の観察	99
3-5	シリコン結晶中のラントル干渉縞の観察	110
3-6	結 語	119
第4章	拡大ラウエ回折法の幾何学と回折像コントラスト	120
4-1	緒 言	120

4-2	分散X線による写像	120
4-3	MLD像コントラストの計算	128
4-4	結語	133
第5章	相対論的量子力学による白色X線干渉現象の研究	134
5-1	緒言	134
5-2	周期的結晶場の電場の強度	136
5-3	多色X線が生み出す共鳴状態	146
5-4	動的構造因子	149
5-5	輻射X線の分散	151
5-6	輻射X線の電場における偏光の混合	153
5-7	結語	155
5-8	付録	156
第6章	新X線球面波理論	161
6-1	緒言	161
6-2	結晶中の動力学的波動方程式	163
6-3	修飾 γ -関数	167
6-4	X線球面波方程式の再構成	169
6-5	不連続の分散面	182
6-6	共鳴関数と分散面	184

6-7	分散面の試算	188
6-8	境界条件批判	190
6-9	結語	193
第7章	総括	194
	参考文献	200
	謝辞	210

第1章 X線顕微鏡学の歴史とX線回折理論の史的展望

1-1 X線顕微鏡学の歴史

第1回目のX-Ray Microscopyの国際会議が1956年8月 Cambridge の Cavendish Laboratory で行われた、引続いて第2回目は Stockholm で行われたことは良く知られている。ここではX線顕微鏡法に関するあらゆる問題が論議されていた。その後、毎3年ごとに開催されて、昨1983年は第10回目の会議が行われた。その間の史的展開の中で様々な技術的發展が成されて来た。第6回目の会議は日本の大阪で開催され、本論文第3章の一部が報告された。

X線顕微鏡が主に論じられたのは1956年と1959年の2回であり、その後の会議ではX線顕微鏡そのものに関する話題は相対的に減少しており、主題はX線、電子線による微小部分析とか、X線分光にかわるものが増加した。会議の名称も、第6回目には、X-Ray Optics and Microanalysis などと呼ばれるようになった。1983年の会議では反射法などによる microscopy が再び話題になっているのは、核融合炉中におけるプラズマ観測とか、SORによる強力なX線が利用可能な事による。

序文にも記したごとく、X線回折法及び回折理論は、Röntgen が初期の論文で指摘した“X線に対する屈折レンズへの期待”に欠ける役割をはたして来た事は、今日のX線分野では常識となりつつある。X線と物質の相互作用を律するこの回折理論は、量子論と電磁理論の応用である。そして実験的困難性に逢着するごとに新たな展開が行われて来たことは、丁史の中に明らかに記されている。本章の前半は本研究開始の時点での状況が記され、当時の状況把握のための報告が要約的に記されている。後半は、本研究の過程で生じた実験事実を説明するために行われた理論的研究のための一展望が記されている。

1-1-(1) 顕微鏡観察へのX線の導入

1956年8月のCambridge SymposiumではCosslett, Kirkpatrick, Engström及びNixon等が一般報告を行って、その後各論が論ぜられた事がproceedingsからうかがわれる。当時のX線顕微鏡学の発展の状況は、この学会報告の中に要約されている。

X線顕微鏡に関する事情はSymposiumのProceedingsに詳しいが、ここではCosslettの一般講演の一部を引用することによって、主要な内題実を明らかにする事を試みた。

“基礎及び応用物理学の国際連盟は会議の進行に先立って、問題に関する一般報告を義務付ける規約を持っておりますが、これは大変に女子ましい事です。目下には、これは単に望ましい以上の事があると言えます。と申しますのは、物質の微小組織に関するX線の利用に対する関心は応範囲の人々によって担われていこうであります。すなわち、生物学、化学、物理学、地質学、金属学、そして多くの技術的分野における関心の深さが有ります。さて、物理的原理と実際的方法の現状について、全般的な事柄を手ぬいかに紹介したいと思います。X線の領域にまで顕微鏡法を伸展することによって約束される主な利益と言うのは、言うまでもなく、その物質に対する透過性と高い分解能であります。

光学系の分解能は照射系の光の波長に直接比例しています。X線の波長は $\sim 10^{-8}$ cmの範囲であって、一方可視光ではその1000倍以上の $0.4 \sim 0.7 \mu\text{m}$ の範囲にあります。X線法に対する期待される極限の分解能は電子顕微鏡によつて達せられたものに近づいて来てあります。

一方、疑いのない事実は、この限界が達せられるためには長い年月が必要で、その間、現在進行中の主要な三つの方法(訳者注: reflection(反射法), contact(密着法), point projection(投射法))においては回折によるぼけの効果を解決しなければならぬであります。X線が本題めて波長の短い電磁波である事から来る、物質中での強力な透過性は、可視光に対して不透明な物質の試料を検査するに当

つての利点となっています。又、その事が試料を空気中において観察することを可能にしています。これは、

電子顕微鏡で試料を高真空中において観察しなければならぬ事と比べると大変な利益で、生体の観察も可能となります。反面この高い物質透過性は、生物試料に対して、コントラストがつかにくいという欠点と

合せ持っています。実用的な分解能は、試料のX線に対する吸収係数 μ が波長 λ および試料の原子番号 Z の3乗($\lambda^3 Z^3$)に依存するので、一つの解決策は軟X線を用いることであり、もう一つは高い原子番号の

元素で造影するなどが解決策となっています。しかし造影剤(ほとんどの生体中の微量元素)が、無機質の物体の検査は難しくなります。第三番目のX線顕微鏡法の利点は立体観察が出来ることとあります。

原理的に通常の光学方式と異なっているために、試料の立体観察のための組立を撮ることは容易であります。これは電子顕微鏡でも同じこととありますが、X線の場合は、はるかに容易であります。

その他の利点の中で特記したい事は、顕微鏡観察に加えて元素分析が出来ることとあります。物質固有の吸収特性を利用した試料中の元素の濃度分析が出来る。又標準試料と比較することによって質量分布を定量することも出来る。結晶性の物質が試料中に含まれてれば、微小部分の回折X線を測定することによって、物質の同定が出来る。この微小部回折と吸収分析は生物、金属分野での新たな

分析装置として有用なもの成りましょう。もう一つのX線法の特長は、X線の照射によって試料から放出される二次X線つまり蛍光X線です。又電子線の照射によって生じる1次X線の発生も同様

ですが、これらの試料から発生する特性X線を用いて、含有物質の定性・定量分析も可能となるのです。これらの諸テーマが今日のSymposiumで議論されることとなります。

これらの諸テーマが今日のSymposiumで議論されることとなります。

X線による方法は、すでに確立した光学及び電子顕微鏡に対する価値ある挑戦をもたらすこととなります。

これらの予想される利点に関して、X線 Radiography の初期から顕微鏡の領域への拡張

が試みられてきました。最も簡単な方法は撮影した陰画を写真的方法で拡大することです。

疑いもなく、多数のX線の開拓者達は、この方法で様々な試料の研究を試みた事でありました。

この性質についての歴史的な記録にのぞく初めてのものは、Cambridge Sidney Sussex Collegeで:

Heycock & Neville が行った研究を挙げるべきが出来ます。彼等は、RöntgenがX線を発見した2年後の1897

に行われた Roentgen Society の第一回の Meeting でこれを発表しています。歴史的に言えば、上述の Micro-

Radiography がX線における顕微鏡法の第一番目に展開された方法であります。論理的には可視光

学に対する類似性から、収束系の使用を初めに論ずるのが適当と見えます。Contact & Projection法

は、それに引ついで述べることにします……”

Cosslettの講演は更に上記の三つの方法などについて概略を述べている。続いて Kirkpatrickの

反射X線顕微鏡について、Engströmが密着式、Nixonが投影式について詳細な概要報告を

行った。一般の研究発表と会議は展開して行った。以下、各方式がどのような状況であったかを要約して

記した。

1-1-(2) Contact Microradiography (密着法, コンタクト法とも各称されている)

この方法はX線によって1:1の試料の透過像を撮るのである。Fig. 1-1 方法が簡単であるので

Cosslettが指摘しているように最も早くから発達した。"Microradiography"の名前が付いたのは1913の

Gobyの仕事が始まりで、その後20年間はFranceが研究の中心になった。1930年代に入って、

超微粒子感光材(例えば Kodak 649 乾板)が出現してからこの分野は急速に発達した。

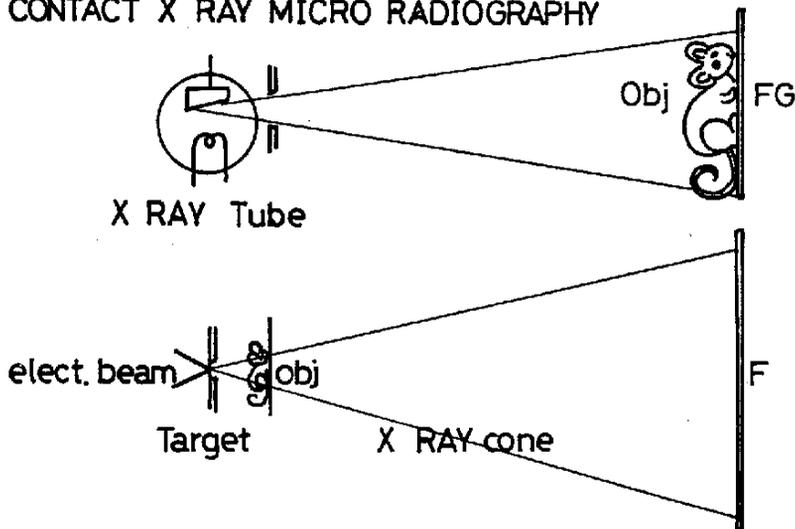
1947年以來 Stockholm の Engström のとって精力的に生物学及び細胞学の分野へ応用が広まった。

この方法は分解能が感光材の粒状性に依存するので写真処理がかなりの技術的の問題となっ

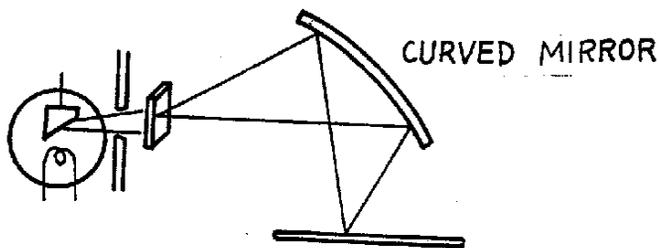
ていた。又、撮影した陰画を光学的に拡大する問題も重要な因子であった。分解能は $\sim 0.2\mu\text{m}$ 位が

Engström 等により実現されたが、更に分解能を高めるために、感光性の結晶を用いるもの(Ladd & Ladd

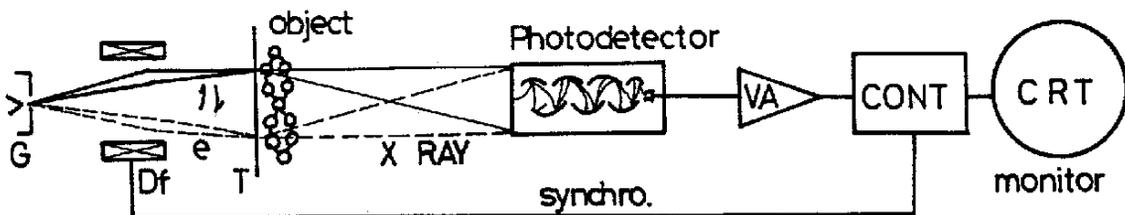
1) CONTACT X RAY MICRO RADIOGRAPHY



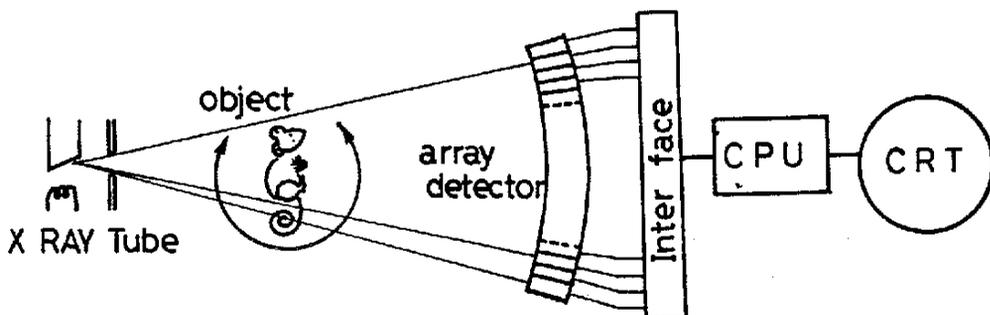
2) PROJECTION X RAY SHADOW MICROGRAPHY



3) REFLECTION X RAY MICROSCOPE



4) SCANNING X RAY MICROGRAPHY



5) COMPUTER X RAY TOMOGRAPHY

Fig. 1-1 X-Ray Shadow Graphy

FG: fine grain film, F: normal grain film, VA: video amplifier, CONT: synchronized controlling circuit, CPU: central processing unit, which calculates true image of object from transmitted x-ray quanta detected by arraied x-ray counters.

1956, 1957) とか感光性高分子を用いる方法も検討された (Pattee & Waynes 1957)。後者の方法は後日 X-Ray Lithography (中山了 1977) として発展し、Electronics の発展の重要な基礎技術に成長したことは良く知られている。

1-1-(3) Reflection X-Ray Micrography (反射法)

X線の物質に対する屈折率はきわめて1に近いので、屈折型のレンズを作ることはほとんど不可能である。

1ÅのX線に対する屈折型のレンズを計算したデータでは、焦点距離が100mに及びることが報告された。様々な方法が言試みられたが屈折型のレンズの実用性は認められなかった。しかし、全反射現象

が存在するのでガラスの表面を研ぎ上げて反射による収束が試みられた。(Henke & DuMond 1955;

Pattee, JR 1953; Hink, 1956; Montel 1954) 鏡の表面に1°以下の角度で表面すくすくに入射する波長の比較的長いX線は、小さくとも実用的な角度で反射する現象がある。この方法でX線の結像を試み

た初めての研究は Jentsch (1929) であった。実用的な結像を得たのは Kirkpatrick & Baez (1948) の仕事である。反射面は円筒面が用いられた、Fig. 1-1。直交した二つの反射面で非収差を取除く工夫が行われて

いた。入射角は90°~89°で、見込角は30'。鏡の表面の仕上げが組立には細心の注意が要求された。

この種の反射光学系に対する収差の研究は Dyson (1952), pattee (1953), Montel (1953, 54) の仕事があり、一対の鏡面系で McGee (1955) は0.5μmの分解能と6倍の拡大像を AlK_α (~8.3Å) のX線を用いて得ている。反射法の開発は理論的限界よりも技術的方法の分野で発展が妨げられていた。

例文は、波長1ÅのX線(12.4 KeV)では見込角0.4°、回折による許すは85Åに及ぶ。(これより、

この方法での観察視野は10μm位の直径になることが Pattee により示された。これは、四面鏡方式で

波長4Å、10μm視野に対し500Åの分解能を得たが、表面の凹凸は10Å以下である必要があった。

当時これらの問題の解決には、非常に長い時日を要すると見られていたが、その後の Electronics の発展

によって、原子層を一層づつ加工して行く様な、サブリミコン加工技術が發展し(応用物理連合講演会 1983 春千葉大学)

この面での技術的向題には光が見えて来た。又、この反射法によるX線の応用は、核融合炉における炉芯のプラズマから発生するX線を観測するに、よって、プラズマ状態の研究などに見られた。現在も反射ミラーの研究は

行われている。Bragg反射を用いた結像も、X線分光の分野では古くから用いられており、結晶の表面に垂直に

近い角度で入射するX線を収束する Cauchois (1946) の手法なども用いられている。彎曲結晶による Bragg

Case の反射を利用した 蛍光X線分析法は実用的に広く普及している。又、この手法を用いたX線の結像

法なども試みられている (Dibble & Dumond 1963)。

法なども試みられている (Dibble & Dumond 1963)。

1-1-(4) Point projection with X-Rays (投射型X線顕微鏡法)

一番簡単なX線による拡大像は試料を真X線源に近接に置くことである、Fig. 1-1。幾何学的には、関係で拡大率が決る。真X線源を得る一つの方法は針孔字真の原理である。この方法による初期の研究は Gernik 1897 にさかのぼるが、X線が弱く不成功に終わった。その後 Sievert 1936, Rovinsky & Lutsau 1957 によって実現した。藤原らによる収斂X線法もある(1926, 1938, 1939)。ヒンホーレに代る微真X線源の使用は Malsch 1933 にさかのぼる。1939年には Ardene & Marton によって $1\mu\text{m}$ 以下のX線源が作られた。1940年代に入り、Cosslett は石炭屑型レンズを用いてX線の像を得る試みを行ったが、レンズの収差が重要な因子であることを見出した。1940年代の後半から1953年にかけて、Cosslett, Tayler, Nixon 達の仕事は投射型顕微鏡を Ultra-Violet の光学顕微鏡と同程度の分解能まで發展させた。試料をX線源に近づけることにより、 $\times 50 \sim \times 500$ の倍率が得られ、X線源から数Cmの距離においた通常の分解能の写真フィルムを用いて、露出時間、0.5~5分位で分解能 $1000 \sim 2000 \text{ \AA}$ を得た、Nixon (1957)。原理的には、レンズの収差(電磁レンズ)が縮少されれば、数 \AA の分解能まで達せらることを考えられたが、同時に、X線源であるターゲット金属中の電子の散乱による、

X線源の拡大を企図するために、電子の加速電圧を下げねばならず、その結果、X線の波長は長くなり、X線の強度の低下が避けられなかった。結局、X線法による顕微鏡の分解能と言うものは、露出時間との妥協の産物では無いと言ふ考えも現われた。Fresnelによる回折の問題も分解能を下げる一因になっていたが、しかし、

X線源と試料を近づけると少くするこゝが出来るので、主として問題とはならず、Source-Specimen 間距離を $1\mu\text{m}$ 以下に近づける、即ち、X線ターゲット薄膜の上に直接試料を載せた様な場合には、フレネル高によるぼけは 100\AA 位であると指摘された。同程度のぼけが試料表面を通過するX線によりおこされるので、投影法での分解能の限界は $100\sim 200\text{\AA}$ 位と、当時予想された。

この projection 法には Contact 法, reflection 法 といくつかの利便 がある。微小部回折、微小部蛍光分析法と組合せられる可能性を有し、当時一番有望な方法であると思われていた。

1-1-(5) Scanning Method (走査型 X線顕微鏡法)

上述の三つの方法は試料の視野内のすべてを同時に記録する方法であるが、試料を載せている X線ターゲットを背面から電子線ビーム (Probe と呼ぶ) で走査する方法も同様に可能である。Fig. 1-1 参照

試料からの X線は、放射線カウンターで受け入れて、電子ビームの走査と同期した CRT 蛍光面上に X線強度に変調した 蛍光像を画く。電子技術的方法である。この方法は Patter (1953, '57) が提案した。

Cosslett (1952) は同様な方法で X線による微小部分析法の研究を指導した。同じような方法だが、

電子的 Probe を直接試料に当て、そこから発生する X線を分析する方法が Castaing (1951) により提案され、Cosslett 又 DumCumb (1956, 1957) により完成された。この方法はその後急速に発展し、

X線マイクロアナライザーの名で世界中に広まった。又、散乱して来た X線ではなく、試料面で同時に発生する

2次電子を検出して観察を行う走査型電子顕微鏡は、現在光学顕微鏡と同じ程度の普及率と産業界、及び学界で持つに至っている。走査型電子顕微鏡は単に表面の凹凸が見えるだけに過ないが、分解能

が $\sim 100 \text{ \AA}$ で深い焦点深度で物の微細な身輪郭が見える事が広範な普及を可能にした。

1-2 X線回折理論の史的展望

投射型X線顕微鏡の試作の終了後、X線顕微鏡は結晶試料の顕微回折的観察に應用され、就中、特異な現象のいくつか^が観察された。これらが生じる成因を探究する中で(第3章参照)従来のX線回折理論には、まだいくつかの未知な部分が残されている事が知られた。特に長年月に亘って使われて来た伝統的な理論を檢査するためには、矛盾点が依つて来る根源を知る必要があつた。従つてX線回折理論にかゝる電磁理論、量子論の發展の下果が見なされた。

現在までのX線回折理論發展の歴史を俯瞰的にながめて見ると、大よそ三つの時期に分けることが出来た。第一の期間は Röntgen によるX線の発見 (Röntgen 1895) に始まり、X線回折現象の発見 Laue et al (1913), Braggの反射式の發表 (W.H & W.L. Bragg 1913) を至り、1930年代の初期に終る。この期間には非相對論的な枠組での古典的量子力学が完成された [Schrodinger (1926), Dirac (1925, '26, '27, '28), Heisenberg (1925, '26, '27, '28, '29), Born (1923, '25, '26, '27), Klein (1926, '27, '28), Darwin (1927, '28) & James (1927)]。この期間におけるX線干渉現象に対する理論的傾向は二つあった。一つの方向は、古典的(X線回折)動力学理論の完成であつた。[Darwin (1914), Ewald (1916, '17)] 理論的方法の基礎は Maxwell-Lorentz の波動力学であり、又古典的量子力学の應用も必要であつた。[Kramers & Heisenberg (1924), Wentzel (1928), & Waller (1927)] もう一つの方向は結晶の構造解析であり、運動学的散乱理論に基礎を置いていた。[Ewald (1914, '20, '21, '24, '25, '26), Darwin (1922), Bragg L. (1913), Laue (1913), and Bragg et al. (1921)] 結晶構造解析にX線回折法が有力であることが多くの科学者達に知られたる様になつた。結晶構造研究の主要な手段

として X 線回折技術が使われるようになった。そして広範囲の物質科学及び産業技術の分野へ浸透して行った。この時期は、第一次世界大戦を間にはとんだ国際的な産業時代の発展期とも重なり、物質科学のみに限らず、国際産業社会を含めた幕開きの世代と呼ばれる事がふさわしい。

X 線理論も幕が明けた。1900~1930 は開幕期である。

第二の時期は Laue の動力学理論の発表 (M. v. Laue 1931) に始まり、1950 年代後半で終る。不幸な第二次世界大戦をはとんだこの時期は、X 線分野は安定成長期であって、物質科学の分野では主要な実用的研究手段となり、安定な地盤を確立していた。結晶構造研究において、数多くの応用が成された。例之は、有名な事例として Kendrew 等が行ったミオグロビンの構造決定が挙げられる (1960)。一方、理論物理学の中心的な焦点は高エネルギー現象の方向へ移ってしまっていた。例之は原子核崩壊連鎖反応や、宇宙線などに関連するものであった。[Fock (1932), Jordan (1932), Tomonaga (1946, '48), Hayakawa et al. (1947), Ito et al. (1947, '48), Koba et al. (1947, '48), Kamesawa et al. (1948), Fukuda et al. (1949), Wick (1950), Goldberger (1955), Martin (1959)] これ等の理論の中で数々の新しい展開が成されていた。特に重要なものは、相対論的共変形式の量子論的場の理論の完成であった。この理論は多体系を比較的簡単な表現により扱えることが出来た。かくして、1940 年代の後半までに、量子電磁理論は完成されたが、それは古典的な Hamilton 形式の場の理論ではなく、量子の直達形式によるものであった。この理論的成功は、物質と X 線の干渉現象を扱う分野には何等影響を現わさなかった。X 線回折理論は、依然として Maxwell 形式の古典的形式の中に残されたままであった [Ewald (1937, '58, '69), Laue (1952, '53), Molière (1939)]。

第三の時期は 1960 年代の初めから現在に至る期間である。此処で注意を喚起すべき事が一つある。それは X 線回折の理論は全く別の範疇に属する事であるが、半導体電子工学に基礎を

置いた高速電子計算機がこの時期になって実用化に事である。X線回折技術と特別に關係が深い事は、その電算機の重要な部分には、莫大な数の完全結晶に近い半導体結晶が用いられている事である。この純度の高い物質と、その完全結晶を生産するために、X線技術は産業の生産工程の中に完全に組み込まれた。現場からは、原子的尺度で生じる物質の構造にかかわる様々な、科学的、技術的の問題が次々と現われて来た。或る問題は古典的な運動学的理論では説明のつかないものも有った。そこで Laue の動力学理論が再認識され、完全結晶及びわずかに歪んだ結晶のトポグラフ上に現われる様々な現象を説明するために展開された。[Kato (1958, '59, '60, '61, '63, '64), Takagi (1962, '69)]. 数々の実用的な技術が、工業的な応用、特に結晶材料の検査と観察技術について開発された。(Lang (1958, '59), Guinier et al. (1949), Hashimoto et al. (1954, '60, '65, '66, '70), König (1951), Fujiwara et al. (1941, '64), Schulz (1954)). 数多くの新しい理論が完全に近い結晶の中に現われる干渉現象を説明するために提案された。[Hildebrandt (1959), Penning & Polder (1961, '64), Bonse (1964, '65, '71), Kambe (1965, '68), Slater (1949), Authier (1966, '67, '68), Wagner (1956), Taupin (1964), Wilkens (1964) and Hattori et al. (1965)], その理論の殆んど全ては、古典的 Maxwell の電磁理論を用い、Laue 流の分散面思考による形式のものであった。わずかな少数の理論が非相対論的枠組での量子論的表現を取り入れていた [Ohtsuki (1964, '66), Ashkin et al. (1966) 及び Kuriyama (1966, '67, '68, '69, '70, '71, '72, '73, '74)]. しかし、この量子的表現の理論も Hamilton 形式の場の理論であるため古典的連続体の形式に帰着せざるを得なかった。

結晶内の X 線の干渉現象を取扱うには、古典的現象論的理論で充分であるとする考えが根強く実験家達の間に残っている [Authier (1967), Kato (1977, '79)] が古典的理論では説明のつかない問題も見出された。[Hashimoto (1965), Kozaki et al. (1968)] 従ってこの時期、1960 ~ 1984

は X 線回折理論の新たな展開にかかわる月台動の某期間と考えられる。 上述のごとく、1900 ~

1984 を 1 幕期, 安定成長期, 月台動期と分類したが、新理論を展開するに当って、従来理論を明確に

把握するために、次の数節に分けて考察を進める。 1-2-1 節では 1 幕期と安定成長期の状況。

1-2-2 節では各理論の特徴と欠点, 1-2-3 節では非相対論的量子論による展開の特徴と欠点

1-2-4 節では量子電磁力学の肉題点, 1-2-5 節では年代的に見た X 線回折理論の整理 など

が論ぜられる。

1-2(1) 古典 X 線回折理論の確立

a) 分散する波の幾何学的関係。

Röntgen による X 線の発見 (1895) 以後、Laue による X 線回折現象の発見 (1912) に至る期間

は反射に関する理論的研究は無かった。同時期に X 線回折の実験が、Bragg 父子によって行われて

いた (W. L. Bragg 1913, W. H. Bragg 1914)。彼等は走査型 X 線回折計の原型となるべき装置を

設計し、実験に供していた。特に W. H. Bragg (父) は熟練した工学者であったことが知られていた。

回折計の X 線カウンターは検電器を備えたイオンチェンバーであった。数々の実験の結果、有名な

Bragg の式 $2d \sin(\theta) = \lambda$ を提案した。以来急速に、X 線干渉現象に関する実験的、理論

的研究が展開されるようになった。Laue は結晶が原子的尺度での格子構造を持つとして Bragg の公式

を代数的に導き出した。Laue は X 線の回折現象は三次元的な原子面からの X 線の波の反射によって生

じると結論した。彼は回折現象が、結晶構造から必然的に生ずることを示したのである。Laue の幾何学理

論は Ewald (1913) により更に一般化された。Ewald は逆格子の概念を導入し、そして原子的なダイポール

振動モデルをもつて X 線回折理論を構築した。"Dynamical theory" は Ewald が創始したのである。

b) 散乱 X 線の計算。

2次の背散乱X線の強度の計算は J.J. Thomson (1914) の考え方に基いて計算された。

Thomsonの方法は背散乱波は、入射X線のともなっている電石磁場によって強制振動させられる電子の放射するエネルギーに拠るのである。この基本的思想は、以後ずっとX線散乱強度の古典的

考え方に受け入れられて来た。結晶構造因子の考えや、反射波振中の重ね合せによる共鳴効果を扱った

Laueの関数は1913年に行われた第2回 Solvay 会議で適合されることになった。この時を境にして、

X線回折波の強度を計算する理論は殆んど実用的なものとなった。原子からのX線の2次の散乱

強度の計算は量子論を更に進められた。当時量子力学は丁度、非相対論的枠組の中の展開の

時期に当っていて、理論物理学の主要なテーマとしてX線散乱現象などが扱われていた。代表的な寄与

は次の人達のものに負っている、Schrödinger (1926), Kramers & Heisenberg (1924), Wentzel (1927),

又、Waller (1928) などであった。ここで共通の手法は電磁的相互作用により生じる3次元の電流

密度の散乱行列成分の決定によるのである。多電子系に関する厳密解は今日でも出来ていないのであ

るから、原子からの散乱強度の計算は Hartree (1928, 1933), Fock (1930), 及び Thomas

(1927) と Fermi (1928) 達が行った近似計算に基盤を置いている。

c) X線の波の干渉の動力学とモザイク概念

結晶から放出されるX線の散乱振中の計算は Maxwell の波動理論を用いた古典的力学概念により

Ewald (1916, 1917) 及び Darwin (1914, 1922) などが行った。ここでは完全な等間隔の格子面を持つ

理想結晶中の等位相の単一散乱が仮定されていた。これらの厳密なX線散乱理論はX線回折

技術の先導的な概念とは認められていなかった。純粹で完全な結晶は1960年代に至るまで作られる

ことがなかったからである。当時、あらゆる結晶性物質はモザイク構造 (Darwin 1922) を持つと考えられていた。

以来現象学的な理想モザイク構造なる考えが、導入される事になった。その結果には実験と理論計算の結

果が一致しなかった。X線回折の観測される強度に關するこの“モザイク構造”の考え方は、

日常に見られる物質についての代表的な考え方に成長し現在に至った。例之は“物質の粉末回折法は未知物質の同定に用いられる代表的な方法になっている。

X線回折法による結晶の構造解析は主に英國におけるW.L. Braggと彼の同僚達の間で發展した(W.L. Bragg 1970)。多数の物質が分析され結晶構造が原子的尺度で決定されたので、

X線回折技術は物質の構造研究における主導的立場を確保するようになった。こちらの実用的な方法は通常運動学的方法と呼ばれている。かくして、モザイク概念は1960年代に至るまで一般的に流通していた。1930年代の初期に、画期的な思想が現われた、Laneの動力学である(Lane 1931)。

この理論は今日では良く知られていて完全結晶をMaxwellの理論で扱っている。動力学は、前述のごとく、しばしの間モザイク概念に抑圧されてはいたが、数学形式が一般的で解りやすく、他の動力学理論より広く普及した。この理論は結晶中に電子密度の連続で周期的分布の概念を導入した。格子の周期性を考慮に入れて、散乱波の振中はフーリエ級数に展開された。Laneの概念には奇数波は位定を持ってゐる。各原子の周辺には電氣的ダイポールがあるが、球形の電荷分布を持ち、電波を輻射すると同時にダイポール自身は周辺の電荷の海の中へ埋め込まれているのである。この奇数波にもかわらず計算された結果は、ある種の動力学的現象を見事に説明し得た。かくしてLaneの理論は結晶中でのX線の干渉現象を理解するための基本概念となった。1960年以降多数の動力学理論がトポグラフィに現われる結晶欠陥を分析するために、Laneの古典的動力学の延長線上で展開された。

1-2-(2) X線回折の古典理論の展開

X線管の陽極で発生したX線の波の特徴は制動電子による連続スペクトルと原子内の量子的過程の共鳴的な光子の放出による特性スペクトルで構成される。今日実用に供される他の

X線源はSOR(周期的軌道輻射, Kohra 1983)と放射線同位元素からの特性X線である。

X線管で発生された大部分のX線は古典的な波の概念によれば球面波と考えられるべきである。

しかしながら、球面波による回折理論の構築は平面波理論に比して複雑であるので、特殊な問題を

除いて通常は平面波理論が受け入れられている。平面波近似は広範に受け入れられて、球面波がフーリエ展

開で表現されるにもかかわらず古典的感覚に慣れている科学者の間で依然として生きている。X線回折理

論の初期の段階では Ewald, Darwin 及び Laue の三理論が存在した。それ等の理論は局部的

な二次波面が球面波であるにもかかわらず入射波、回折波共平面波として扱った。

a) Darwin の理論 (1914)

この理論での平面波は結晶内の平行な原子網面で特徴づけられる鏡面反射波として扱われている。

反射平面波は各原子からの二次的球面素波の波面の重ね合せとして組立てられ網面と散乱方向の角度の

関数として表現されている。結晶内のX線の吸収は、通常のごとく、結晶構造因子に虚数成分を導入するこ

とにより説明されている。理論構成が簡単であるために、今日でも特殊な問題には用いられている。

しかし、概念構成が一般性を欠いているため、多重反射に應用する事を困難なものとした。

b) Ewald の理論 (1916, 1917)

この理論は一種の平面波概念であるが、特別な二段階構成を持っている。ここでは

三次元的結晶格子に束縛されている原子まわりの電子が結晶空間を伝中する入射電気平面波によ

って強制振動されるダイポール振動として振舞うことが仮定されている。各ダイポールは球面素波を

放出する。それら素波の波面を連ねて出来た平面波は結晶内空間を二つの成分の速度で伝中する。

一つの成分波は真空中の光と同じ速度で伝中し境界面で入射波と接合され境界波と呼ばれていた。

もう一つの成分は境界条件で決定される未知の速度を持つ結晶内部波 "Winnen-Welle, 内波" と呼ば

れていた。"内波"は通常の電磁波ではなく結晶内空間のみに存在するダイポール振動の波なのである。ダイポール波の状態は力学的平衡にかわる永年方程式にガウスの定理による境界条件を適用して求めた。かくて、分散面概念がここで導入されたが、Ewaldは分散面を位相空間でのダイポール波の波面と考えていた様に見える。しかし対向する一組の双曲面の波面についての説明は彼の論文には見付からない。Ewaldの概念は物質の連続性について古典的感覚を持っている人にとって近付き難い理論とされ普及しなかった。

c) Laueの動力学理論(1931)

Laue理論の出發点は各々の結晶格子空間が連続的電子密度で充滿されていて、Maxwellの力学をこの連続媒体に適用し、古典波動論の境界条件を用いて結晶内の波動場を決定した。Laueは分散面概念を拡張し、結晶内の電磁波の波動ベクトルを境界面における電場ベクトルの接線成分の連続性によって入射波の波動ベクトルと接続した。Laueの概念は古典的なMaxwell-Lorentzの電磁理論に慣れている人にとって親しみ易く容易に扱えたのでLaueの方法は世界中で使われるようになった。基本的概念はEwaldのもの異っていたが、双方共にMaxwellの古典的連続概念で取扱われた。したがって、通常使用される巨視的な実験条件に関する限り同じ結果を与えることは疑いもない。この古典的な境界における同等性はKohler(1933)及びWagenfeld(1968)によって波動力学的にも証明された。しかし、この理論の同等性にもかかわらず原子モデルにおける相異は散乱波の干渉過程では異った状況を生み出す可能性が期待された(Ewald 1979)。

d) 球面波理論

1950年代に入って結晶の精製技術が非常に改良されたので、それによらない結晶中の不純物、結晶欠陥を検出するために実験的観測手段が多数開発された。一般的によく用いられる方法はLangのトポグラフィックな方法である(A.R. Lang 1959, Kato & Lang 1959)。この方法で結晶内の

微細構造が記録フィルムの上に1:1の倍率で撮影された。このLangの装置を用いて、又次に研究されたSi結晶の断面トポグラフに現われた鍵形のペンデル干渉縞を説明するために、球面波理論が加藤により導入された(N. Kato 1961, 1963, 1964)。平面波理論では鍵形の干渉縞が説明出来ず、Bornの散乱理論(Born 1926)が基本概念として用いられた。ペンデル干渉縞はすでにEwaldの初期の論文(1917)で言及されているが純粋に光学的干渉現象である。従ってペンデル縞のコントラストは、結晶の歪状態が増大し、結晶内の共鳴場が縮小するにつれて、減退して行き徐々に消滅してしまう。完全結晶についての平面波理論はこの問題についての予知能力を知っていた。この様な事態を受け入れるために現在までの二種類のX線回折理論が構築されて来た。一つは完全結晶用のもの、他方はモザイク結晶乃至は不完全結晶用のものである。現在までの任意の結晶状態中の電磁場を表現し得る理論は無い。Katoの理論においては水平方向、一方向の原子の変位がとり込まれた理論であったが鍵形のペンデル縞の生成の説明には成功した。

e) 不完全結晶に対する平面波理論.

半導体産業の発展にともなって、完全結晶の供給が容易になるに従って完全結晶中のX線の異常透過現象の実験的観察が多数の研究者により行われるようになった。(Borrmann & Hildebrandt 1959, Hildebrandt 1959, Wagner 1956) 結晶歪みが増大するにつれて、透過X線強度の減少する状況が注目を引き、多くの研究者が研究に参加した。歪の状態を考慮に入れたいくつかの理論が開発された。中でもPening & Polder (1961)の理論は良く知られている、この理論は弾性変形した結晶におけるX線回折強度の実験的観察に基礎を置いている。Pening達は歪みの状態に依存している局所的格子ベクトルの関数として、X線の径路にわたる波動ベクトルと位相変化を計算した。4:1の基本概念はLaueの古典的平面波理論であった。X線光子のモメンタムに対応する波動ベクトルは結晶の変形

にもなう波動ベクトルの微小変化を含まることになった。その結果変形された結晶中の細いX線の経路は曲るようになった。これは粒子の運動における正準方程式と同じ形式であること表わしていた。よってこの理論は光学理論の一種であるとされる様になった。Peningの理論はBonse(1964)により更に一般的な形に発展されてわがくに歪んだ結晶に適用された。同じ頃Kambeはこの理論をSlaterの方法(1949)との類似性によりWannier関数(Wannier)を用いて幾何光学として展開した。この中で結晶格子の微小変形は結晶の周期性の擾動として導入され、結晶体の分極率に比例するものとして与えられていた。

これ等の理論は幾何光学の特徴を持っており、結晶の変形は結晶物質の屈折率の変化として与えられた。従って理論の結果は主に波動場における歪中心付近でのX線光子の軌道変化を論ずるものであった。故に、干渉現象そのものの特性についてはあまり関心がはらわれてはいなかった。

f) 不完全結晶での球面波理論

Kato & Lang (1959) が Si 結晶中の X 線ホントル 結を存観察して以来、数多くの理論が提案されるようになり、Uragami (1969, '70, '71), Chukhovskii (1970, '72, '73, '74, '78), Petrashen (1974, '76, '80), Indembom (1972, '74), Balibar (1967, '69, '75, '83), Authier (1966, '67, '68, '70), Kuriyama (1967, '68, '69, '70, '71, '72, '73, '74, '75), Afanasev (1971), Wilkens (1964), Kohn (1972)。

これらの理論の洪水に先立って、Laue-Bethe 理論 (Laue 1931, Bethe 1928) にもとづいた拡張された一般理論が歪んだ結晶中の回折現象を説明し導くこと期待された。この目的によって "ラウ理論" が Kato (1963) により導入された。彼の基本的方法は、再び Born の散乱理論 (1926) に範を取った、この中で球面波が散乱波として用いられた。この理論における進歩は、原子の変位を完全結晶の場合からのずれの形で定義し、結晶歪の新しい表現を導出したことである。変位の効果は、電子波の場合においてはポテンシャルエネルギーの擾動部分に反映され、X 線の場合には分極率の中に反映された。そのような表現となったのは、理論が

電子波とX線電磁波を同じ形式で扱う形にこの之がいられたからである。この理論的展開に於て、Katoは

歪んだ結晶の中のポテンシャルの高の理論 (Kato 1964) を、球面波入射の条件下で解した。しかし球面波は近似の過程で円筒波となり、詳細な議論は、フーリエ展開の部分素波に用いられた平面波について行われていた。これは勿論標準的な方法ではあるが、球面波としての振舞は依然として不明確なものを残した。

g) 不完全結晶についての準平面波近似

フラク近似は唯一の座標方向の変位による歪に適用の範囲を限るように見られた。そこで歪結晶中の任意の微小変位を取扱える動力学理論が Takagi によって建設された (Takagi 1962, 1969)。似たような表現が Taupin (1964) によっても発表された。Takagi は結晶内波動場の波面振中として複素振中を持つ変形された平面波として "準平面波" を導入した。これは比較的広汎な自由な応用性を持っていた。従って任意の波面の入射波と整合し得るものであった。この線に於て、数多くの理論が提案された [Balibar (1969, '75, '83), Uragami (1970, '71), Saka et al. (1972, '73), Chukhovskii (1974, '77, '78), Katagawa (1974), Petrashen (1974, '76), Indenbom (1974)]。X線の場合の電気偏位ベクトルの基本部分波としての複素振中は定数ではなく、位置の関数であつて、その位相項は結晶の歪を表わす項を含んでいる。結晶の分極率と歪の成分を持った周期関数の組で波動場内でフーリエ展開されている。これ等の物理量をX線の場合 (理論は電子線を含む様な一般形で表わされているが、ここではX線の場合のみを考へている) は Maxwell の方程式に適用することによって 2階の双曲型の偏微分方程式を得た。特徴的なことは、波動方程式が準平面部分波の干渉効果を積分した形で与えられているので、自ずから導き出される複素振中は歪結晶内波動場の中の定在波を表現しており、直接ポテンシャルの高と比較し得るものを与えていた。結晶内波動場内の透過波成分も回折波成分も同様であるが独立した方程式で表現されている。Takagi が指摘しているように (1969) 基本部分波の振中は結晶内の場所の関数であり、結晶の外で観察され得るのは、結晶内での干渉

が積算された結果である。結晶内の波の位相的变化は振動中に含まれておるので、準平面部分波の波動ベクトルの定義があまり明解ではない。よって Takagi は境界条件を備える波の波動ベクトルは平均値として対称反射の場合を考えれば良かった (Takagi 1969)。特徴的なことは、結晶内の波の波動ベクトルと位相関係を決める Laue 思考に現われる分散面を表わす永年方程式が用いられていない事である。これは Riemann の積分方程式の特徴である。その結果位置の関数としての積分された複素振動が導き出された。もう一つの特徴は、Takagi の方程式が座標の原点で特異性を示すことであつた。この特異性は結晶の波の共鳴性を考えることにより取除かれた (Ohkawa & Hashimoto 1984)。

ん) 重ね合せ原理批判

1930年から1965年の35年間における回折理論の傾向の中で、特に1959年から1965年に多数の理論が生み出されたことは特記するべき事実である。これらの理論のいずれも古典的な Maxwell の理論の中で展開され、古典量子論の結果である原子散乱因子を用いて構築されている。従つてこれらの理論的形式は電子密度の連続分布と部分波の重ね合せの上に出た連続理論と呼ばれるべきであろう。X線の回折強度を計算する事は高速電子計算機の進歩によって容易なものとなり、理論的予想と実験の比較は簡単な作業に成つた (Taupin 1967, Patel 1979, Petrášková et al. 1980, Epeboim 1979)。その結果、一種の楽観的思想が出現した。X線光学における回折現象の全ては古典論の枠内で扱える様に見せると言ふ考えである。[Chukhovskii et al. (1973), Pinsker et al. (1975), Takagi (1975, '82), Kato (1976, '79, '80)] しかし、重ね合せ原理を取り上げて見ても解りにくい問題が残つてゐる様に思われる。古典的な取扱ひの中では波束概念がしばしば波動場の中の粒子状態を表現するために使われている (Balibar et al. 1975)、この中でフーリエ展開が無批判的に用いられてゐる、単なる数学的表現でしかない。良く知られてゐる事実であるが、一つの電氣的インパルスを合成するには基本波とその高調波が必要である。この成分波が欠落すればインパルスは

歪んで来る。粒子状態が結晶場の中でフーリエ展開出来るためには、その成分波と成す調和振動子の無限の完全系が存在する必要がある。もしこの条件が満たされれば忠実な粒子状態は展開出来ない。結晶内における調和振動子は、各原子内の電子であるが、有限サイズの結晶内の電子の数は有限である。従って展開の忠実度が高くなるためには、いくつかの電子は非調和振動をしなければならなくなる。結晶のサイズが小さければ、この程度はひどくなり

物理的現象の表現としての

もし忠実なフーリエ展開が出来なくなる筈である。従って物理的条件を無視した単なるフーリエ展開は意味を持たない。従って近似的にでも波系により粒子状態が表現出来るには結晶にはある程度の存在が不可欠なよう、凝集系が不可欠である。次に一つの光子が有限サイズの結晶に入射する場合を考えてみたい。

入射光はスリット系などを用いない。従って高調波を伴った単一の調和振動波長の光子として、球面波を考えると良い。波束ではない光の波があるとする。結晶内電子は ^{全て}このX線光子に付随する電場で強制振動し散乱波をThomsonの原理で輻射し、Braggの条件、Laueの条件を満たす方向へ回折波を放出するとは良く知られた通りであるとする。結晶は有限であるから回折波は限られた波面の数を持つざるを得ない。即ちこの波面を合成

強制振動による

するためには結晶内に高調波振動が存在しなければならない。しかし結晶内には入射光による単一の調和振動しか存在しないとすれば論理矛盾となる。事実を正せば、結晶内には完全系に近い高調波の振動子が存在し、それが固有の共鳴振動をしている筈である。即ち、入射波は単一調和振動の波でも凝集系であれば、それに固有な調和振系を持ち得るのでフーリエ展開により表現出来る合成波が生じると言える。この結晶内の固有の振動系の存在は例えはEwaldのダイヤル振動のごときも知らないが、物理的条件などは明確には言えない。X線理論にこの問題に解答を与えるべきものであるか。通常二波乃至は三波以上の高調波の存在は無視した形で議論が展開される事実は衆知であり、今後の解決に待たざるを得ない。

1-2(3) 非相対論的量子力学による回折理論

X線回折理論の発展の初期の段階において原子散乱因子が計算され回折理論の中へ組み込まれた、その計算の過程で非相対論的量子力学が用いられた事実は衆知であり、現代の回折理論を半古典理論と呼ぶ場合もある。X線の散乱方向と回折強度のこゝろ巨視的現象の問題に関する限り古典的近似理論の枠を超えた矛盾は現れない。にもかかわらずX線回折理論に関する量子力学的理論の建設が行われていた。初めの試みは Molière (1939) によって為された。彼の理論は基本的には Laue の古典論の延長線上に在るものであるが、テンソルの形で展開された一般化分極率は独特の性質を帯びていた。結晶中の量子的電流を計算する方法は、電子の古典的方法と同じであった (Kramers & Heisenberg 1924, Wenzel 1927, Waller 1928)。しかし静的な部分と動的な部分がテンソルの中で分離されていた。残念なことにこの方向にわたる発展は成されなかった。二番目の量子力学的回折理論の試みは相対論的量子力学と採られた方法で Ohtsuki (1964, '66) により提案された。しかし理論構成の第一歩で Hamilton の場の表現方式を採用しているために結果として非相対論的なものになっている。計算の方法として Feynman のグラフィック表現を用い散乱行列 S を二次の擾動まで展開した。この中で結晶内外の状態ベクトルは真空状態 (無粒子、無物質系) が採用されている。少くも結晶の外側には光子は存在しない状態であるから、入射波も回折波も存在しない状態が物理的環境として選ばれている。従って Ohtsuki の理論が表現しているのは光子-電子の相互作用が行われた後の結晶内に於ける残留場を表現する見做せる。相互作用の結果としての真空状態は、エネルギー-運動量の保存関係を表わすと共に結晶内に蓄積されたエネルギーにより生成される共鳴場を表現する見做せるコントラクション形式 (縮約と訳されるがこれは数学的な操作のことで物理的には有知なエネルギーの伝播状態と見做せる) により表現されている。この共鳴状態は結晶内に蓄積された多数の光子状態の存在を暗示している (Okawa & Hashimoto 1984)。

この状態は、数学的形式としては、伝統的な分散関係における永年方程式で表現される力学的平衡状態と等価である。従って Ohtsuki (1966) はコントラクション形式の分母に現われる極を用いて、通常用いられている分散関係と同じ関係を導出することに成功した。

第三番目の量子的理論の試みは、Askin & Kuriyama (1966) によりなされた。この理論は非相対論的枠組であるが、散乱行列と真空状態を基本状態とするのは Ohtsuki の理論と似ているが、結果は異なっていた。Kuriyama (1967 a, b, 1968 a, b, 1969 a, b) は理論的結果を不完全結晶の内部構造の解析に応用したが、理論的限界によることから、原子的尺度における光子-電子の相互作用を表現する事には成功しなかった。従って、偏光面の混合、もともと Kuriyama が提案した概念であり、光子の偏光面の不連続的変化を意味する現象は依然として未解決のまま残された。[Skalicky (1972), Sauvage (1977), Cohen et al. (1978), Hart (1978), Hart et al. (1979, '81), Wilson (1980), Mitra et al. (1981), Ishida et al. (1982)].

X線科学の発展の流れの中では局部的な問題ではあったが、白色X線による干渉現象の観察は徐々に応用の場を広げて来た [Guimier (1949), Shultz (1954), Fujiwara et al. (1941, '64), Hashimoto, Kozaki & Ohkawa (1965), Aristov (1975, '76), Boettinger et al. (1976)]. 白色X線の線源としては主に制動輻射が用いられて来たので、個々の光子のレベルにはどの位相関係にも因果性が存在しないと信ぜられて来た。従ってラウエ回折顕微鏡法の回折トポグラフにおける白色X線の位相関係によって生じる干渉現象は、トポグラフ上の一真近傍の成分波間においても常に相関性のないものとして無視されて来た。白色X線によるペンデル干渉現象が観察され、又^{連続な}偏光成分の混合現象が1次元していると考えられるペンデル効果のうなり現象が報告されたので、回折現象を量子力学的な現象として再び見なおすことが要請された。既存の古典的お法では解決できなかったからである。従って、すでに光子-電子系相互作用に関する限り完成していると言われている相対論的共変形式による量子場によって回折理論を再構築するべきと判断された。

1-2-(4) 量子電磁力学の展望

良く知られている様に、量子力学の初期の展開は、原子の場の中の電子の振舞いが古典力学の枠の外へ出てしまったところから始まった。量子力学が発展を行っている間に、古典的X線回折理論は Laue に

より 1931 に発表された。その当時状況にして量子力学の領域の人達の主要な関心は高エネルギー現象の方向へ移っていった。当時量子電磁力学にはいくつかの未解決の問題が残されていた。それらは以下のごとき問題であった。

一つは量子力学を相対論の要請、ローレンツ変換に対し不変にする事であった (Tomonaga 1946, '48, Schwinger 1953), 二つ目は電子の自己エネルギーの問題 (Weisskopf 1939),

三つ目は真空偏極, 四つ目は赤方偏位と紫外偏位であった。これら全ての問題は突然に発見されたスペクトルと計算値の間の差として現われていたもので、原因は電子の質量と電荷に原因が帰着された。

これら全ての理論的困難は 1940 年代に Tomonaga と Schwinger の努力により取除くことに成功し、

少なくとも光子-電子の相互作用に関する限り量子電磁力学は矛盾のない理論として完成された。

電子と陽電子の生成・消滅過程が理論の枠組の中へ取り入れられた。時空の概念は 4次元に拡張された。理論の枠組は多時間・多体系の上に組上げられた。その結果、時間軸を特殊

座標とした Hamilton の場の表現方法は放棄された。場の表現は Vertex 周辺の相互作用の中だけに現われることになった。量子状態を表わす状態ベクトルと電子の波動関数は分離され、状態ベクトル

は状態の論理的な存在・非存在を表わす確率を示す 2 値的なものとなり、電子の波動関数は、光子の電磁場の方程式 (Maxwell) との関係と同じように、Dirac の電子場の方程式を満たす存在となった。

電子・光子の一般的描像は粒子としての性質を表わすものになった。真空中、物質中における光子-電子の相互作用は、非相対論的な場合とは異って、媒質を通過する相互作用描像を棄て、量子の直連的描像に取って代った。古典的な場形式の相互作用は Vertex (頂点) まわりだけに見られる (Feynman 1948)

相互作用系の物理的表現はグラフィックな手段を用い明瞭な物理的直感を支えながら高次の摂動まで与えられることになった (Dyson 1949)。古典論と量子論の根本的違いは、今日では良く知られているように、不確定性原理である。系の観測可能なパラメータは統計的平均で表わされ、苛苛的値はその期待値のまわりに分散しているのである。この自然の厳密な法則は物理的存在における認識中の決定論の放棄を迫るものであることは説明を要しない。これも相対論的変形式の量子力学の一つの結果であった。

1-2-(5) X線回折理論研究の文献

Table 1 に集められた文献は、巻末の表にある参考文献を年代別の発表された年代に順に並び変えたものである。この表から理論的發展に関連して、20世紀のX線科学の展開についての検討を行うことが出来る。ここに集められた文献は、量子電磁力学と、X線のトポグラフィに関連した実験を含めたX線電磁理論に関連したものに過ぎない。論文は時間的に並び替えられ、著者の国別に分類されている。国の分類は四つの地域で代表させた、即ち 西ヨーロッパ (WE)、東ヨーロッパ (EE)、アメリカ大陸 (AM)、日本を含めたアジア (ASIA)。国々の下の数字は巻末文献表の文献番号である。簡単な文献内容を示す Key word を示してあるので、発表の様子が大体知られる。文献の集録はもっぱら筆者の個人的関心によるものであるが、備った内容にならざるを得ないが、本文に記した三つの時代区分は明瞭に、文献の発表密度から読み取れる。

- 1). 1900 ~ 1930 大部分の文献は西ヨーロッパ、特にドイツで発表されている。これは第一次大戦で敗戦になったとは言いつながら戦後のドイツの奇跡的復興による経済的繁栄が寄与していると思われる。
- 2) 安定成長期: 1930 ~ 1960 ドイツの影響が減少している。一方アメリカ大陸側からの寄与が増加している。この時期に日本からの寄与も徐々に増加している。

3) 月台動期 1960 ~ 1984 多数の文献の著者が世界中から生じようとした。

非常に粗い Key word データからは大した情報はくみとれぬが、少くとも次の様なことは言えると思われる。

純理論的な仕事に於て言えば、中部ヨーロッパの人々が与えた貢献をしている。例之は Heisenberg,

Schrödinger, Born, Bor, Ewald, Laue, som. 英国, 米国, 日本 の理論家と言われる

人達は大概実験家としても優れている本業に思われる。例之は, W.L. & W.H. Bragg, James, Hart,

Kato, Takagi and som, もう少し詳細に見れば、興味深い問題も現われて来ようと思われるが、

本論文の主題からは外れるので筆を止める。

1-3 結 言

1-1 (1) ~ (5) : 1950年代後半 物質の内部構造の観察の機運が生物学, 化学,

物理学, 地質学などの諸分野で高まっていた。X線顕微鏡研究が国際的な規模で

行われ、1956年のCambridge会議を皮切りに毎3年ごとの国際会議が開かれるようになった。

X線顕微鏡は光学及び電子顕微鏡の補完を成すもので、X線の高い物質透過力と潜在

的高分解能の限界 $\sim 100 \text{ \AA}$ 及び物質の定性・定量分析能力などにより、依然として現在も研究

が進められている。1960年時点では主に三つの型式のX線顕微鏡が研究されていた。

一つは反射法であり、鏡面反射によるX線の結像系の構成を目的としている。この方法の問題点は

鏡面の加工技術に於て $\sim 10 \text{ \AA}$ オーダーの精度が必要とされた。

二つ目の方法は伝着法である。丁度的に古く、使用が簡便であることから、生物、医学の分野では広く

用いられている。写像技術、及び像拡大技術などに検討すべき問題が多い。分解能は $\sim 0.2 \mu\text{m}$ 。

三つ目の方法は投射法である。分解能は主に電子線収束法による微小なX線源の大きさで

決る。現在までに達せられた分解能(1960年時点) $1000 \sim 2000 \text{ \AA}$ 。分解能を主に決定する要因は、

電子銃の電子レンズ収差であると考えられていた。本誌を始め電子銃を走査して、試料中の元素分析に利用する可能性が1956年代に於て指摘されていた。その走査式の顕微鏡が、その後の10~20年の間に長足の進歩を成した。

1-2 (1)~(5) : X線回折の歴史が、三つの時期に分けられて論じられた。第一の閉幕期は1900~1930, 第二の安定成長期は1930~1960, 第三の胎動期は1960~1984。

閉幕期においては、古典的なX線回折理論が Maxwell の電磁理論と、古典量子力学の上に組上げられた。安定成長期においては、X線回折技術が広範な物質科学の分野に浸透したことで Laue のX線回折理論が生れたことが特筆するべき事であった。

胎動期はX線理論の洪水のごとき顔を見せ、これは1960年代に入って半導体結晶技術が長足の進歩を上げたことと密接な関係がある。この期に生み出された理論形式を概観すると球面波理論、導平面波理論、おぼろげに歪んだ結晶に対する平面波理論、並びに球面波理論、光学理論、相対論形式の半古典論的回折理論、非相対論形式の量子論的回折理論などが数え上げられた。これらの中で、白色X線による結晶中の干渉現象を、特に Laue 法で研究するに当って、球面波理論である必要性、偏光面の混合の取扱いの問題などから、相対論的共変形式の場の量子論を調べる必要が要請された。

Table 1 Bibliographies of X-Ray Diffraction Theories and Allied Fields

Year	1st-Author	Key Word	W.E.	E.E.	AM.	ASIA
1898	Röntgen	Über eine neue Art von Strahlen	217			
1906	Thomson J.J.	Ionization by Röntogen Rays	250b			
1912	Bragg H.	X-rays & crystals	38			
	Bragg L.	Specular reflection	39			
1913	Bragg L.	Diffraction, short wavelength, crystal	40			
	Laue et al.	Interferenzerscheinungen	188			
	Laue	Kritische	189			
1914	Darwin	Theory of x-ray reflexion (1)/(2)	50/51			
	Ewald	Kubischen kristal., pyrit	69			
	Debye P.	Wärmebewegung	56a			
1916	Ewald	1):dispersion theor.,2):refl./brech.	70/71			
1917	Ewald	3):kristalloptik ;4) Interferentz	72/73			
1920	Ewald	Opt.& elect. statish. potential	74			
	Ewald	Reflexionsgesetz d. röntgenstrahlen	75			
1921	Ewald	Reziproke gitter	76			
	Bragg L. et al.	rock-salt	40a			
1922	Darwin	Reflexion of x-ray, imperfect crystal	52			
1923	Born et al.	Phasenbeziehung, Bohr model,	29			
1924	Ewald	Brechungsindex, Abweichung, Bragg gesetz	77			
	Kramers et al.	Streuung v.strahlung d.atom	173			
	Weisenberg K.	Röntogengoniometer	263			
1925	Born et al.	Quantenmechanik 2	30			
	Born et al.	Aperiodischer vorgange	31			
	Born et al.	Quantenmechanik	37			
	Dirac	Fundamental equ. of quantum mechanics	57			
	Ewald	Intensitäten und strukturfactor	78			
	Heisenberg	Quantentheoretische umdeutung	111			
1926	Born	Quantenmechanik, stossvorgange	32/33			
	Born	Adiabatenprinzip d.quantenmechanik	34			
	Dirac	Quantum mechanics &, Hydrogen atom	58			
	Dirac	Elimination of nodes	59			
	Dirac	Relativity quantum mech.,compton scatt.	60/61			
	Ewald	Intensitat d. röntgenreflexe	79			
	Heisenberg et al.	Anomalen zeemaneffekte	112			
	Heisenberg	Mehrkörperproblem und resonanz	113			
	Heisenberg	Spektra von zwei elektron	114			
	Heisenberg	Schwankungserscheinungen	115			
	Klein	5-dimension relativistic theor.	160			
	Klein	Wellenmechanik,korrespondenzp.	161			
	Schrödinger	Quantum theor.,eigenwert.	225			
	Schrödinger	Heisenberg,Born,Jordan	226			
	Schrödinger	Eigenwert problem	227			
1927	Born et al.	Quantentheor.,molekeln	36			
	Born	Physical aspect, quanten mechanik	35			
	Darwin	Zeeman effect, Spherical harmonics	53			
	Darwin	Electron as a vector wave	54			
	Dirac	Quantenmechanik, stossvorgange	62			
	Dirac	Physical interpretation, quant.theor.	63			
	Dirac	Emission & radiation, Q.theor.	64			
	Dirac	Dispersion Quant.,theor.,	65			
	Heisenberg	Mehrkörper, resonanz	116			
	Heisenberg	Anschaulichen inhalt	117			
	James et al.	Zero point energy by x-ray diffraction	132			
	Klein	5-dimensional theor.	162			
	Wentzel G.	Theor. compton effects	261			
	Thomass l.h.	Calculation of Atomic field	250a			
1928	Darwin	Wave equation of electron	55			
	Darwin	Diffraction of magnetic electron	56			
	Dirac	Quant. theor.of electron	66/67			
	Heisenberg	Ferromagnetismus	118			
	Klein	Reflexion von electron,	163			
	Klein et al.	Streuung,electron,relativistic	164			
	Hartree	wave mechanics, non-coulomb central field	124a			
	Fermi	Statistisshe method.	96b			
	Waller	Total scattering of X-rays	260			
	Bethe H.	Electron diffractyion	21a			
1929	Heisenberg et al.	Quantendynamik d. wellenfelder	119			

	Heisenberg et al.	Quantendynamik d. wellenfelder	120	
1930	Fock	Mehrkörperproblem	96a	
1931	Laue	Dynamische theorie	190	
1932	Fock	Zweite quantelung	92	
	Jordan	Zweiten quantelung	133	
1933	Kohler	Dynamische reflexion, Röntgenstrahlen	187a	
1934	Nishina et al.	Photo-electric creation		202
	Nishina et al.	Negative energy electron		203
1937	Ewald	Dispersionsbedingung f. röntgenfelder	80	
1939	Molière	Quantenmech., theor., x-ray	199	
	Molière	Reflexion u. absorption	200	
	Molière	Theor., x-ray	201	
	Weiskop	Self-energy	262	
1941	Fujiwara et al.	Reflection pattern, capillary x-ray tube		93
1945	Zachariassen W.H.	Theory Diffraction		264
1946	Tomonaga	Relativistic invariant formulation		249
1947	Hayakawa et al.	Elimination of auxiliary condition		109
	Hayakawa et al.	Elimination of auxiliary condition		110
	Ito et al.	Cohesive force field		129
	Koba et al.	Relativistic invariant formulation		165
	Koba et al.	Relativistic invariant formulation		166
1948	Feynman	Space-time approach nonrelative Q. mechanics	87	
	Feynman	Relativistic cut-off for quantum mechanics	88	
	Ito et al.	Cohesive force field		130
	Ito et al.	Cohesive force field 2		131
	Kanesawa et al.	Relativistic invariant formulation, meson,		137
	Kanesawa	Relativistic invariant formulation, meson,		138
	Koba et al.	Self-consistent subtraction		167
	Koba et al.	Subtraction method		168
	Schwinger	Covariant formulation	229	
	Tati et al.	Subtraction		248
	Tomonaga	Infinite reaction		249
1949	Dyson	Radiation theor. of Tomonaga, Schwinger & Feynman	68	
	Fukuda et al.	Self-consistent subtraction in quant. theor.		95
	Fukuda et al.	Self-consistent subtraction in quant. theor. 2		96
	Feynman	Theory of positrons	89	
	Guinier et al.	Methode d. Laue	98	
	Slater	Electron, periodic lattice		224
	Schwinger	Vacuum polarization		230
	Schwinger	Radiative correction		231
1950	Wick	Collision matrix		256
	Feynman	Electromagnetic interaction		90
1951	Feynman	Operator calculus		91
	König	M ₀ O ₃ , elect. microscope	171	
	Schwinger	Gauge invariance		232
	Schwinger	Quantized field 1		233
	Schwinger	Green function 1/2		234/235
1952	Laue	Energieströmung	192	
1953	Laue	Teilchenström	193	
	Schwinger	Quantized field 2/3/4		236/237/238
1954	Hashimoto H.	Thin Crystallin Films, electron microscopy		102
	Schulz	Divergent x-ray		228
	Schwinger	Quantized field 5/6		239/240
1955	Goldberger	Causality condition in quant. theor.		97
1956	Wagner	Anomaler schwachung	255	
1958	Ewald	Group and phase velocity		81
	Kato	Flow of x-ray & material wave, perfect cryst.		140
	Lang	Dislocation	194	
	Ong sing poen	X-ray microscope	207	
1959	Hildebrandt	Gekrummte Röntgenstrahlen	122/123	
	Kato et al.	Pendellösung fringe, x-ray diffraction		141
	Lang	Projection topograph	195	
	Martin et al.	Many particle system		197
	Borrmann et al.	Absorption, Weg im schwach deformierten	28a	
	Born & Wolf	Optics	37a	
1960	Hashimoto et al.	Elect. microscopy, edge dislocation		103
	Engstrom et al.	X-ray Microscopy & Microanalysis	85	
	Kato	Energy flow, perfect cryst.		142
	Kohra K.	Theor. dynamics		169a
	Kendrew, et al.	Mioglobim	187b	
1961	Kato	Theor., pendellösung fringe		143

table 1-3

	Kato	Theor., pendellösung fringe, spherical wave		144
	Penning et al.	Anomalous transmission deformed cryst.	209	
1962	Takagi	Theor., small distortion		242
1963	Kato	Theor., perfect & distorted		145
	Kato	Theor., distorted cryst., perturbation		146
	Kato	Pendellösung fringe, distorted cryst., Fermat's principle		147
1964	Bonse	Theor. ausbreitung x-ray, schwach deform	23	
	Bonse	Starke ablenkung, elastisch gebogen, cryst	24	
	Bonse	kontrast an versetzungen	25	
	Fujiwara et al.	Si, Divergent x-ray		94
	Kato	Pendellösung fringe, distorted cryst. two beam		148
	Kato	Pendellösung fringe, distorted bent cryst.		149
	Ohtsuki	Temp., absorption, x-ray		204
	Polder	Anomalous transmission non-isotropic	210	
	Taupin	Theor., deforms	246	
	Wilkens	Gitterfehlen	257	
	Wilkens	Kontrast, gitterfehlen	258	
1965	Hattori et al.	Structure factor of Si, pendellösung fringe		107
	Hattori et al.	Pendellösung fringe, beat		108
	Bonse	x-ray interferometer	26	
	Bonse et al.	Interferometer, Laue case	27	
	Hashimoto et al.	Si, pendellösung fringe, white x-ray		104
	Kambe	Theor., schwach verzerrten gittern	135	
1966	Ashkin et al.	Quantum theor., x-ray diff.		7
	Authier	Disribution d. deformation, cristaux presque parfaits	8	
	Authier et al.	Dislocations d. macle, lamelle d. macle	9	
	Hashimoto et al.	Selected area x-ray diffraction		105
	Kato	Pendellösung fringe, distorted cryst.		150
	Ohtsuki et al.	Electron/X-Ray diffraction		205/206
	Schwinger	Relativistic quantum field theor.		241
1967	Authier	Contrast of images in topography	10	
	Balibar et al.	Theor., & exper., images de dislocation	17	
	Kuriyama	Theor., distorted cryst.		174
	Kuriyama	Anomalous absorption		175
	Taupin	Dislocation image	247	
1968	Authier	Dislocaton images, transmission topo.	11	
	Authier	Contrast, stacking fault	12	
	Authier et al.	Dynamical contrast, plane defect	13	
	Authier et al.	Theor., propagation, x-ray, default plan	14/15	
	Ewald et al.	Three strong rays		82
	Heno et al.	Trois rayons forts	121	
	Kambe	Theor., schwach verzerrten gittern	136	
	Kato	Spherical wave, absorbing perfect cryst.		151
	Kato	Integral reflection power		152
	Kozaki et al	Selected area diff., white x-ray		172
	Kuriyama	Theor. distorted cryst.		176
	Kuriyama	Theor., distorted cryst.		177
	Wagenfeld	Ewald & Laue theor.	254	
1969	Balibar	Theor., generalization d. notion	18	
	Bursill	Shear, molybdenum trioxide	42	
	Ewald	Introruction to dynamic theor.		83
	Takagi	Theor., distorted cryst.		243
	Kato	Pendellösung fringe, structure factor		153
	Kuriyama	Theor., isolated imperfection		178
	Kuriyama et al.	Theor., vibrating cryst.		179
	Sharma	Growth mech., whisker	222	
	Uragami	Pendellösung fringe Bragg case		251
1970	Authier et al.	Nouveaux champs, cristal parfait	16	
	Bragg L.	Early days	41	
	Chukhovskii et al.	Theor. image of real crystal		43
	Hashimoto et al.	Morphology, Mo-oxides, ammonium salt		106
	Kuriyama	Theor., scattering amplitude		180
	Kuriyama et al.	Primary & secondary extinction		181
	Uragami	Pendellösung fringe, Bragg, finite thickness		252
1971	Afanasev et al.	Dynamical theor. cryst. defect,		1
	Kachamin	on the boundary		134
	Kuriyama	Compton-raman		182
	Reibedanz	X-ray microscopy	216	
	Uragami	Pendellösung fringe, finite thickness		253
	Bonse et al.	Defocuss, interferometer	28	

table 1-4

1972	Indenbom et al.	Geometric optics of X-Rays		125/126
	Chukhovskii et al.	Phase, resonant r-quantum	44	
	Kohn	Distorted cryst. strong abs.	170	
	Kuriyama	Theor. comparison,		183
	Saka et al.	Theor., polyhedral, Laue case		218/219
	Skalicky et al.	Polarization	223	
1973	Chukhovskii et al.	Dynamic scattering, dislocation	45	
	Kuriyama	Theor., imperfect crystal		184
	Saka et al.	Bragg-(Bragg) ^m		220
1974	Chukhovskii	Dynamic scattering, inclined, wavefront,	46	
	Indenbom et al.	Packing defect, x-ray image	127	
	Katagawa et al.	Theor., wave field, constant straine grad.		139
	Kuriyama et al.	Spatial representation		185
	Kuriyama et al.	Immobile dislocation		186
	Litzman et al.	Theor., bent cryst.	196	
	Petrashen	Quadratic displacement	211	
1975	Aristov et al.	Determination of angles between blocks topographs by schultz method	3	
	Balibar et al.	Structure of wave packet	19	
	Balibar	New wave field, deformed cryst.,	20	
	Kuriyama	Critic on classical dynamics		187
	Pinsker et al.	X-ray spectrometer	213	
	Takagi	Wave optics		244
1976	Aristov et al.	The optical scheme, highly divergent beam	4	
	Aristov et al.	Imperfections, crystallographic characteristics, widely divergent x-ray beams	5	
	Boettinger et al.	Topographic camera	22	
	Kato	Extinction		154/155
	Petrashen et al.	Constant deformation gradient	212	
	Petrashen	Elastically bent cryst.	214	
1977	Chukhovskii et al.	Theor. Laue case, homo. bent crystal	47	
	Sauvage	Plan-polarized x-ray SOR	221	
1978	Cohen et al.	Polarization phenomena		49
	Chukhovskii et al.	Theor. uniform strain grad., Green func.	48	
	Hart	X-ray polarization	99	
1979	Ewald	A review		84
	Epelboin	Contrast of dislocation	86	
	Hart et al.	Tuneable polarizer, x-ray & neutron	100	
	Hrdy et al.	Farady rotation		124
	Kato	Improve. Secondary extinction		156
	Patel	Computer simulation	208	
1980	Aristov et al.	Pendellosung fringe, spherical wave, perfect crystal	6	
	Kato	Integrated intensity, 2ndary extinction		157
	Kato	Statistical dynamics		158/159
	Petrashen et al.	Computer simulation	215	
	Wilson	Probability, x-ray, dispersion	259	
1981	Hart et al.	Optical activity & faraday effect, x-ray	101	
	Mitra et al.	Polarization ratio	198	
1982	Ishida et al.	Exp. & theor. plane wave image of a dislocation		128
	Takagi	Theor., distorted cryst.		245
1983	Balibar et al.	Theor., new wave field	21	
	Kohra et al.	Synchrotron radiation		169
1984	Ohkawa, Hashimoto.	Polarization-Mixing. Q.F.T.		207a

第 2 章 X線顕微鏡の試作

2-1 緒 言

1956年に Cambridge で行われた X-Ray Microscopy and Microradiography に関する国際会議の報告書には、反射式、密着式、投射式などの X線顕微鏡の研究が記されていた。更に各論の中には反射式の技術的困難さ、密着式における写真材料分解能の問題点、投射式の X線像分解能と X線強度などが検討された。又顕微回折法、走査型 X線顕微鏡などの研究、その他の応用研究など、その後には発展した数多くの X線顕微鏡法にかかわる基本的な報告が成された。この中で物々のグループが着目したのは投射型 X線顕微鏡であった。この微小 X線源を用いる装置の利点は、

1) 光学顕微鏡より分解能が高い、2) 焦点深度が深い、3) X線の透過性により内部構造の立体観察が容易、4) 試料作りが容易、5) 回折-蛍光分析法の併用による物質の定性定量分析の可能性などであった。反面、困難と目された点は高分解能にともなう X線強度の低下、すなわち観察照度の低下であった。従って高光輝度の照射系である電子銃の開発が志向された。そこで、電子銃高光輝

度化に資する研究が行われ、一方、高安定な X線回折装置としての研究も行われた。ここでは微小 X線源

X線源を作るために必要とした次の要素、電子銃、電子光学系、電源装置、電子ビーム軸合せ装置、X線源サイズ測定法、などについて論じる。更に装置応用上の問題点である X線陰影拡大像の実際、X線顕微鏡試料の扱い方、試料駆動装置とフィルムカセット、写真材料などについて記す。筆者らが関

与の手本にしたものは、1956年の国際会議の論文集の中の Le Poole & Ong Sing Poen の Delft 式と Cosslett, Nixon & Pearson 等の Point projection 式であった。1960年には Cambridge

Univ. press から Cosslett と Nixon の編集による X-Ray Microscopy なる本が出版され、それ以前の X線顕微鏡に関する諸研究の紹介と文献が収録されていて大変役立った。

2-2-1) 電子銃 (1)

試作の X線顕微鏡の光学系は Fig 2-1 のごときもので、電子銃で発生した電子線を真空封じと X線取出窓を兼ねた薄膜金属ターゲットに収束、衝撃して制動 X線を発生させるものである。X線の強度は装置の基本的性能を決める上で最も重要であるが、その一要因は電流源である電子銃の輝度である。電子顕微鏡に用いるタンゲステンハヤピンフィラメントを用いて基礎実験が行われた。電子ビームの輝度 R は Fig 2-2 のごときパラメータを用いて、一般に次式で表わされる。

$$R = \frac{I}{\pi r^2 \cdot \pi \sin^2 \alpha} \quad (\text{A/cm}^2/\text{str.}) \quad \text{--- (2-1)}$$

ここで I は電子ビーム電流 (A), r は電子ビームクロスオーバー半径 (cm), α は電子ビーム発散半角 (ラジアン) とする。フィラメントの単位表面積から放出される電流を $i_c \equiv (I/\pi r_0^2)$, Fig 2-2 に示したビーム半角を α_c とすると, $\pi/2$ に達する半球面空間に放出される電子ビームのフィラメント表面上の輝度は、

(2-1)式を用いて：

$$R_c = \frac{i_c}{\pi} \quad \text{--- (2-2)}$$

となる。フィラメントが $T^\circ\text{K}$ の温度飽和の状態では A_k をタングステン定数 ($A_k = 60 \text{A/cm}^2$), ϕ_0 をフィラメント材料の仕事関数, k をボルツマン定数, e を電子電荷とすると Langmuir による、

$$i_c = 2 A_k T^2 \cdot \exp(-e\phi_0/kT) \quad \text{--- (2-3)}$$

となり、電流密度 i_c は温度の関数として求まる。しかし、これは純熱的なものではなく、フィラメント表面に電界が存在することを考慮しなければならない。フィラメント表面の付近には空間電荷層を生じ、フィラメントに対し相対的に電位が低下し、その電子差 V_c を生ずる。この電位と熱放出電子の間に熱的平衡状態が生じるので、

$$eV_c = kT \quad \text{--- (2-4)}$$

の古典的関係がある。(2-1), (2-2), (2-3), (2-4) 式を用いると、フィラメント表面上の輝度

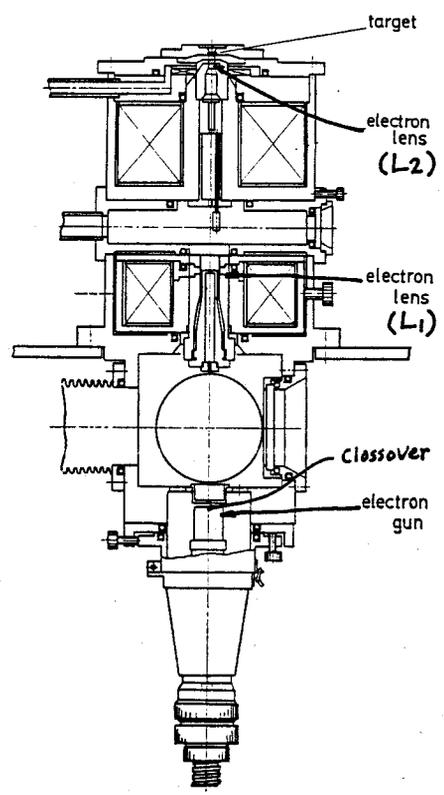


Fig. 2-1 言式作X線顯微鏡電子光学系
(Kozaki, Hashimoto & OHKawa 1968)

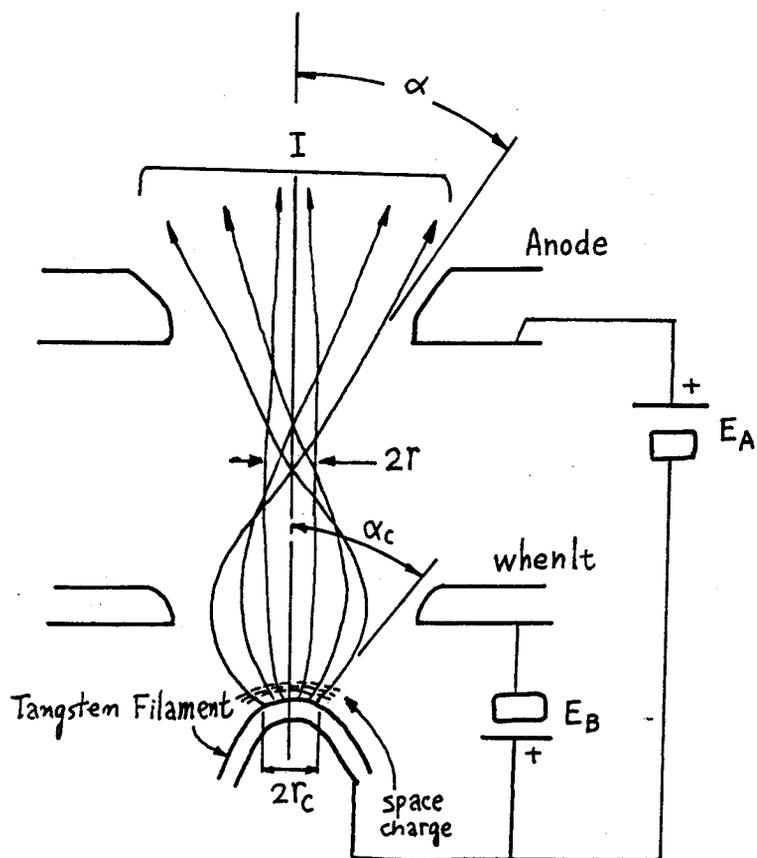


Fig. 2-2 電子銃周辺部概念図

が求まる。

$$R_c = \frac{2eVc}{\pi K} \cdot A_k T \exp(-e\phi_0/kT). \quad \text{--- (2-5)}$$

輝度はそれを定義している場所での加速電界に比例している。例えば $A_k = 60 \text{ A/cm}^2$, $K = 1.38 \times 10^{-23} \text{ J/deg}$, $e = 1.602 \times 10^{-19} \text{ C}$, $\phi_0 = 4.54 \text{ V}$ (タングステンの場合), $V = 10 \text{ kV}$ とすると, $T = 2600^\circ \text{K}$ で $R = 2 \times 10^4 \text{ (A/cm}^2 \text{ /str)}$ を得る。 2800°K では 9×10^4 に達するが、実用的にタングステンフィラメントを使用する時には 2600°K

位が安定性、寿命の点で具合が良かった。 Langmuir (1937) によれば電子ビームの R/V の値は如何なる電子光学系をビームが通過しても不変であることが証明されているが、これは (2-5) 式からも予想

出来る。 Fig. 2-3 のごとく電子光学系で予備実験を行い、フィラメント前面数 mm のところに生じる電子ビームのクロスオーバー像の直径を測定した。加速電圧、電極形状で多少変化するが、 0.15 mm のタングステンフィラメントを用いた電子銃の場合、 $50 \mu\text{m} \sim 100 \mu\text{m}$ の値を得た。電子銃周囲の電極形状をいろいろ変えると、クロスオーバー径と電子ビーム発散半角の積はほぼ一定であることがわかった。

これは (2-1) 式から当然の帰結であった。 Fig. 2-1 に示した光学系で電子銃前面に生じたクロスオーバー像をターゲット上に結像した。 (2-1) 式から明らかのように、光学系では理想的には輝度が一定なので、電子銃の放出電流は全てターゲットに流入する様に思える。従って、ターゲット上の電子線焦点径が小さくすれば X 線源の光輝度も上がるように見えるが、電子レンズ系の収差の存在のために現実とは異なる。通常 L_2 レンズの強さを一定にして収差が最小になる条件に設定した。すなわちターゲット付近での電子ビームのひろき角 α を一定にして用いるので、^{(2-1)式に示す} 輝度不変の原則により電流密度一定の条件が得られる。したがってターゲット上での焦点径を小さくすると、その半径の 2 乗に比例してターゲットへ流入する電流が増減し、依って X 線強度もその線源サイズの半径の 2 乗に比例して増減する。

実測では電子線焦点径が $\sim 1 \mu\text{m}$ のときターゲットに流入する電流は $\sim 1 \mu\text{A}$ であった。この流入電流

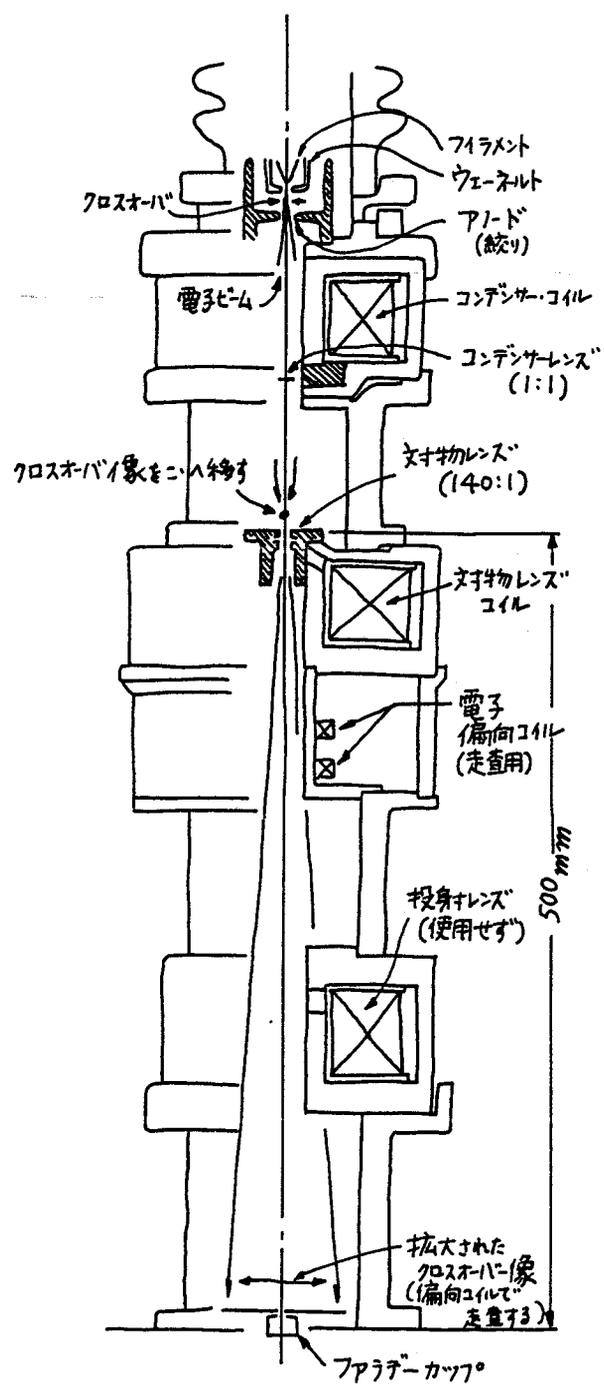


Fig. 2-3 光単度測定実験に用いた電子光学系の略図

量を増加させるためには、電子銃の光単度の向上と、電子光学系の収差の減少、抑制が同是角解決の鍵となった。

2-2-(2) 電子銃(2)

Point カソードが電子銃光単度向上の決定的鍵であることが否かの論争があった時期があった、(Hibi (1956), Maruse et al. (1953, '57, '59), Swift & Nixon (1962))。

Fig. 2-1 に示した装置の電子銃に タングステン477° を溶接したフィラメントを取付け、

$\sim 10^{-6}$ Torr 程度の真空度で予備実験を開始したが、安定な電流出射を得るには超高真空が必要なることがわかった。当時の試作装置を Fig. 2-4 に示す。 電解

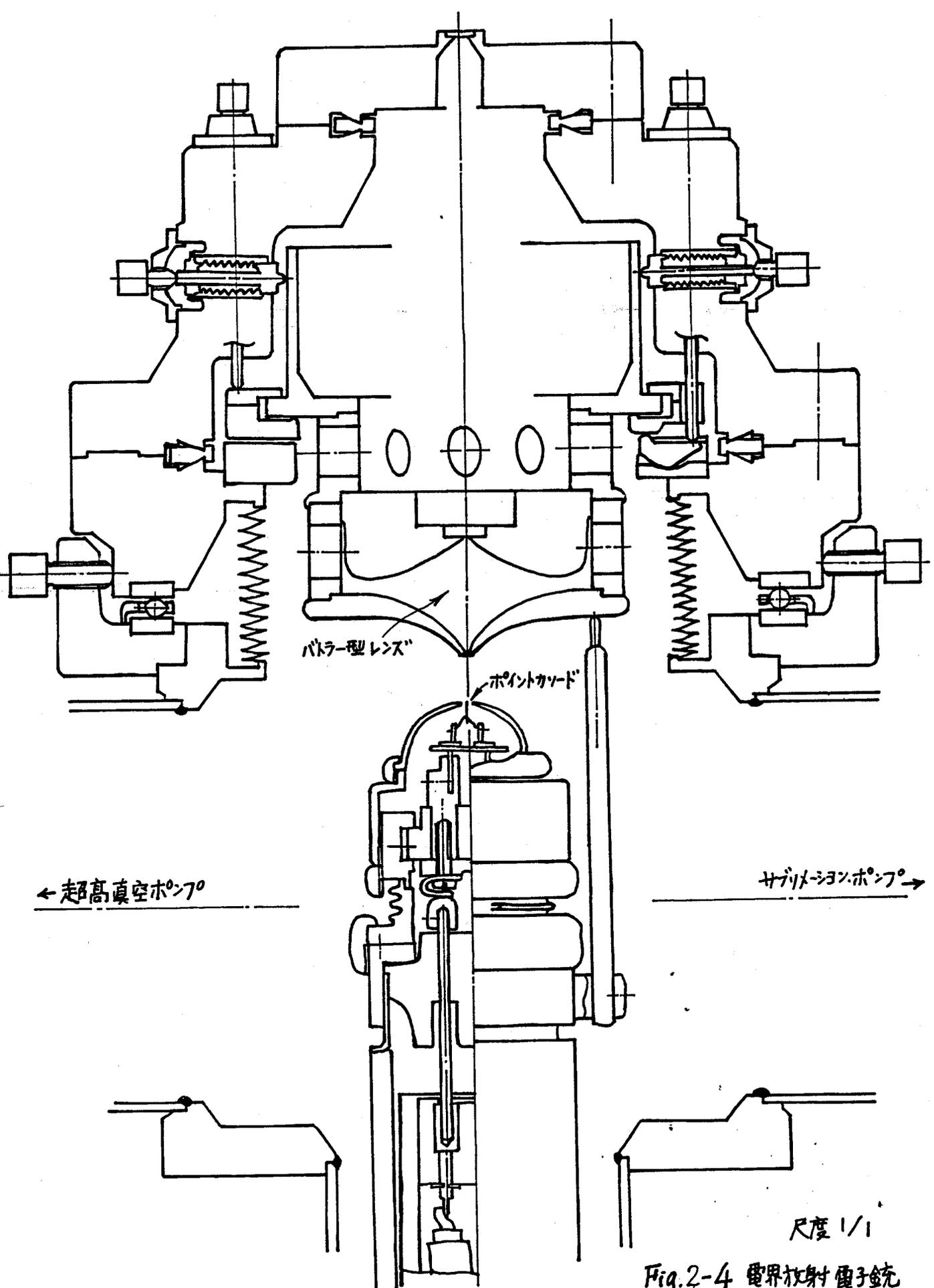
研磨法で先端半径 1000 \AA 以下の タングステンポイントフィラメントを作った。 1×10^{-8} Torr 以下の高真空に系を排気し、 $800 \sim 900^\circ\text{C}$ で加熱・脱ガスした後、電界放出を行った。冷陰極電界放出を

安定に持続させるためには常に $3 \sim 5 \times 10^{-8}$ Torr 以下の高真空に、多少フィラメントを加熱した状態で進行熱電界放出を安定に持続させるためには、 $2 \sim 3 \times 10^{-7}$ Torr 以下の高真空が得られれば

良いことが分かった。 タングステン477° の材料としては、通常の多結晶のスウェーデン製によって作られた

タングステン線は放電が不安定で、安定な放電を得るためには、単結晶タングステンのポイント477° が不可欠であることが分かった。放電安定化の条件は判明したが、X線顕微鏡電鏡に組込実用化するには至らなかった。その後、各方面でポイントフィラメントを用いた電子銃が実用化した。

代表的なデータは A.V. Crew (1968) のもので、電子放出光単度 $R = 7 \times 10^{11} (\text{A/cm}^2/\text{str.})$ を得たと



バトラー型レンズ

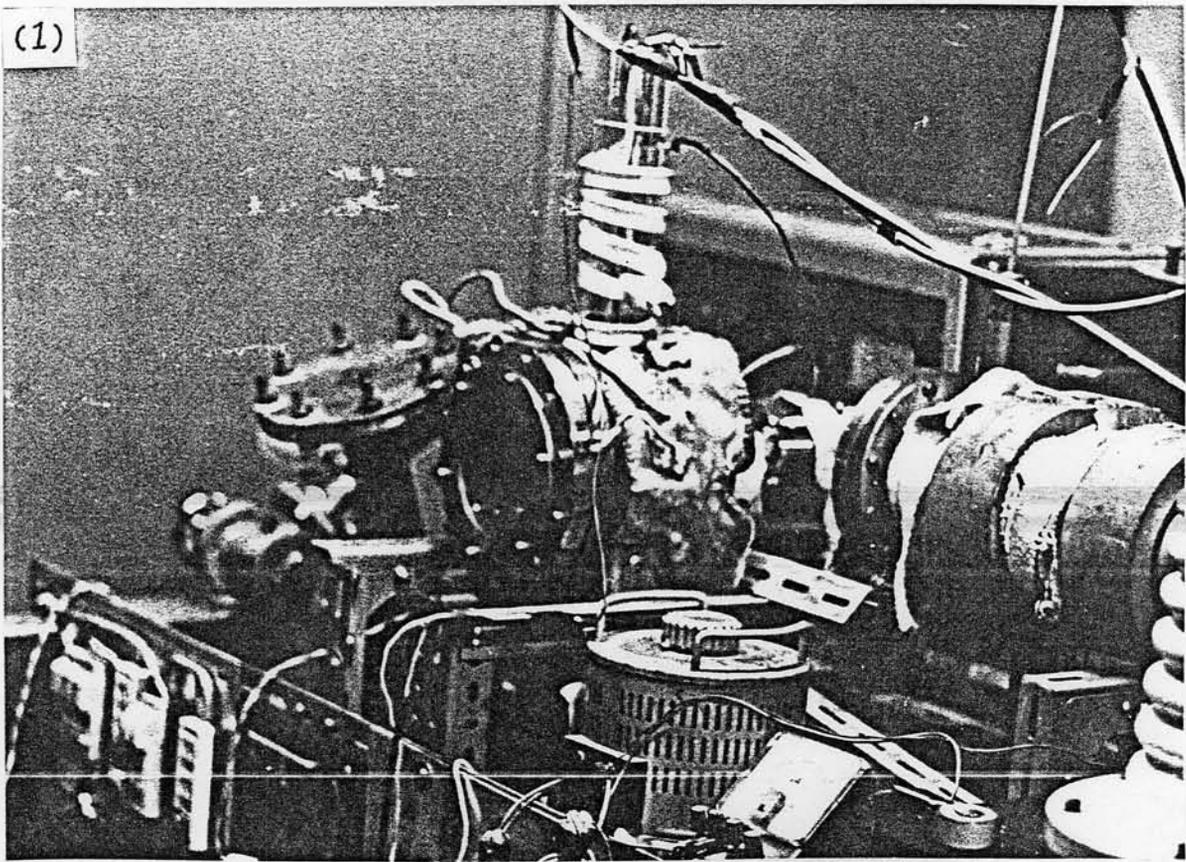
ポイントカード

← 超高真空ポンプ

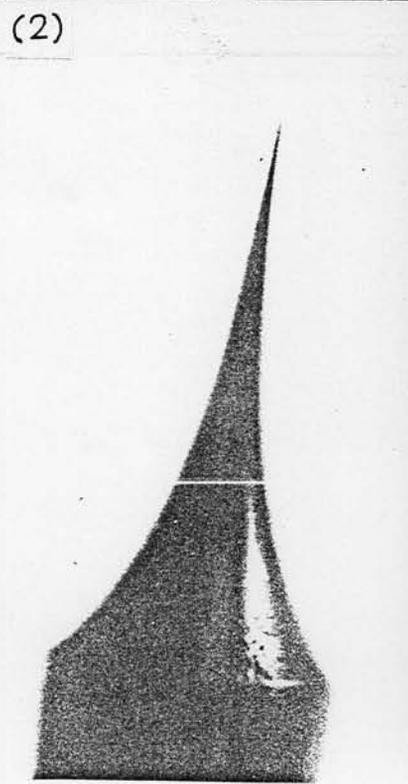
サブリムジョンポンプ →

尺度 1/1

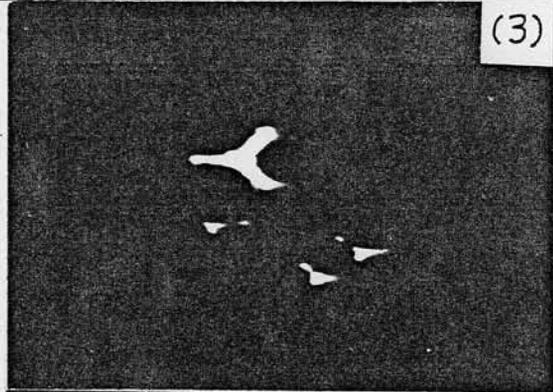
Fig.2-4 電界放射電子銃



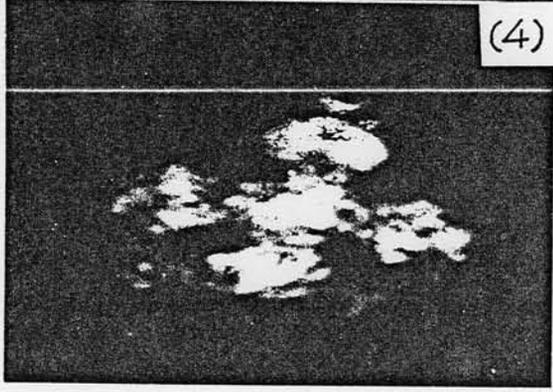
(1)



(2)



(3)



(4)

- (1) 実験装置全系
- (2) タングステンポイント
- (3) 110面の放射パターン
- (4) 310面の放射パターン

Fig. 2-5 電界放射電子銃の予備実験

報せられている。通常のハセピン型の電子銃と比較すると、数値の上では $10^6 \sim 10^7$ 倍光輝度が高い。しかし通常のハセピン型の場合の電子放出面積は大略 0.1 mm^2 位であるのに対して、ポイントカソードの場合は $\sim 1 \text{ mm}^2$ 位であるので面積比は $\sim 10^{10}$ 位ある。従ってポイントフィラメントより安定に放出される全電流は $\sim 100 \mu\text{A}$ であり、又ビームの放射角は $\sim 20^\circ$ 位で、ハセピン型の場合のクロスオーバーから見込んだ $\sim 10^{-3}$ Radian に比較すると、2桁も広い角度で放出されている。通常の電子光学系用電子レンズ系の収差が大きいため、電子銃から見込む光学系のひらき角は半角で $\sim 10^{-3}$ radian 位である。即ち、現在の装置の光学系は、ハセピンフィラメント用に計画されたものなのである。このポイントフィラメントを用いた電子銃を組込んだ場合 Total の電子ビームの中、有効に X 線発生に寄与するのは $\sim 1 \mu\text{A}$ 程度となる。したがって現状でポイントフィラメントが有効に働く場合は、ターゲットでの電子線焦点径が $0.1 \mu\text{m}$ 以下の場合であると考えられた。この概算は Crew のデータ (Crew 1968) から確認出来る。以上の実験結果から、X 線顕微鏡に直ちに組込んで使用した場合、拡大透過像には有効であるが、顕微鏡用として用いるには不十分であろうという推定が出来た。

2-3 電子光学系

言式作 X 線顕微鏡 (Kozaki, Hashimoto, Okawa 1968) の電子光学系 Fig. 2-1 はハセピンフィラメントを用い電子銃前面に出来た電子線クロスオーバーをターゲット上に糸宿少結像し、目的の焦点サイズ、 $0.1 \sim 1 \mu\text{m}$ の X 線源を作るために、Cosslett-Nixon 型 (1956) の 2 段電子レンズ方式を採用した。1960 年当時、アメリカ GE 社が商品として 2 段青銅電子レンズ方式の X 線顕微鏡を売り出していたが、

あえてコスト高の石炭界方式を採用した理由は、長時間に亘る露光を必要とする X 線回折像を撮るためには高安定度・高分解能化が見込まれた電石炭界方式が好ましいと判断した事による。

X 線焦点サイズを $0.1 \sim 1 \mu\text{m}$ に設定したのは、当時の技術では、予備実験などの結果から見ても、

その辺が限界と思われたからである。又、電子光学的に縮小出来ても、長時間に亘って、温度の変化、装置を含めた周囲の振動などを考えると、X線焦点を含んだX線光学系を静止状態に保つことは至難の技であると考えられた。以上の考察のもとに設計された Fig. 2-1 の電子光学系の主要部原理図を Fig. 2-6 に示す。Helmholz-Lagrange の関係によって、同図パラメータを用いて：

$$\alpha_1^2 r_1^2 = \alpha_2^2 r_2^2, \quad \text{---- (2-6)}$$

が成り立つ。電子銃クロスオーバー半径 r_1 の電子線ビームをターゲット上で電子線焦点半径 r_2 への縮小率を $M < 1$ とすると、(2-6)式から：

$$M = r_2/r_1 = \alpha_1/\alpha_2, \quad \text{---- (2-7)}$$

が導かれる。L₁ レンズに電流が流れていない状態すなわち、L₂ 単一レンズがかかっている場合、合成レンズ系の主面の位置が絞リ A₂ のところに在ると考えると、縮小率は：

$$M = \frac{d_3}{d_1 + d_2}, \quad \text{---- (2-8)}$$

のごとく、幾何学的に求まる。α₂ は π/2 より大きくなるから、α₁ は Fig. 2-6 の値を用いると、縮小率の限界は：

$$M_{\min} = \frac{2d_1}{\pi} \approx 0.001 \quad \text{---- (2-9)}$$

が導かれる。すなわち、クロスオーバーサイズを 100 μm とするとターゲット上での電子線焦点サイズは 0.1 μm になる。実際には絞リ A₂ を最大に開いた状態でも α₂ ≈ 1 rad で π/2 より小さくなるが、電子線クロスオーバーも、少しは小さくなるので (2-9) 式の限界は、ヘリコンフィラメントを用いた場合の縮小の目安である。電界放出型のポイントカソードの場合は、クロスオーバーに相当する糸源半径は ~ nm (Crew 1968) 程度、~ μm の電子線焦点を r₂ の位置に結ぶには (2-9) の条件を

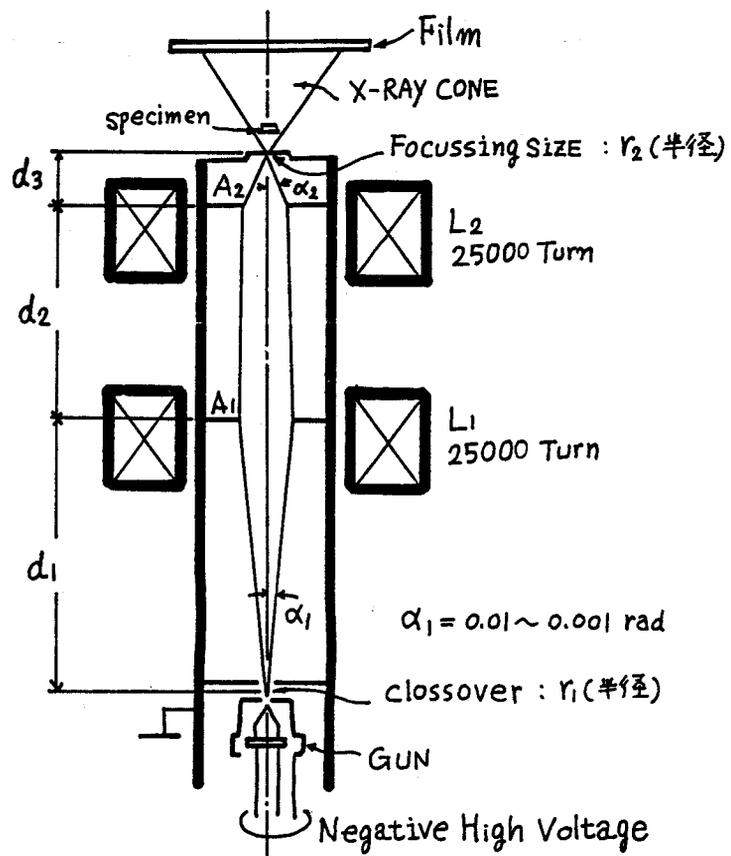


Fig.2-6 電子光学系原理図

逆にした拡大レンズ系が必要で、この場合性能を決めるものはレンズ系の収差である。

電子レンズは光学レンズに比較して収差が大きく、大口径、大開口角のものを作る事は莫大しく、中でも球面収差を小さくすることは莫大しい。球面収差係数を C_s とすると、真電子源から放出された電子がターゲット上で結像する場合の像のぼけは Fig. 2-6 の記号を用いて、半径で：

$$r_s = C_s \alpha_2^3 \quad \text{----- (2-10)}$$

になる。 C_s は長さの次元を持っており、Cosslett 等の場合 $C_s = 2 \text{ mm}$ であった。Liebmann et al. (1951) のデータを参照し、かつターゲット周りの構造物の形状を考慮して、Fig. 2-6 に示す L_2 レンズの仕様は、焦点距離 (mm) 2 mm 、レンズ内径 4 mm 、lens Gap 2 mm 、 $C_s \cong 2.5 \text{ mm}$ などを用いた。

その後 20 年以上たった現代の超高分解能の電子顕微鏡のレンズの場合でも $C_s \cong 0.7 \text{ mm}$

(横田康広氏 博士論文 1981 大阪大学) である。これらの値はレンズ設計の困難性を示している。

レンズ L_2 の電子線絞り $A_2 = 0.1 \text{ mm}^{\phi}$ とし、 $\alpha_2 = 0.05/2 = 0.025$ したがって $\alpha_2^3 = 1.6 \times 10^{-5}$ を得る。

従って電子線焦点ぼけは直径で $2r_s \cong 7.5 \times 10^{-5} \text{ (mm)} \cong 0.08 \mu\text{m}$ になる。これらの値を用

い Fig. 2-7 に示すごとく、電子線絞りをレンズ中心におき X 線ターゲットを焦点距離 f_2 の近くへ置

く構造を設計した。前述のごとく、レンズ L_2 単独の縮少系では、この場合 $\alpha_2 = 0.025$ であり、

縮少率 $M = 0.001$ とすると光学系の全長は 2 m となり、電子線入射半角 $\alpha_1 = 2.5 \times 10^{-5}$ となる。

この値を用いるとターゲット流入電流は減少し、X 線強度は実用レベルに達しないことは明らかである。

したがってレンズ L_1 を加がせレンズ L_2 の前焦点 f_2' よりもレンズ L_1 側にはフラスオーバー像を結ぶこと

くレンズ L_1 を所か石磁することにより、レンズ系全体の大きさを削減させ、かつターゲット流入電流の加減

も容易に出来る。Fig. 2-8 にこの事情を図解した。幾何学的縮少率は L_2 と L_1 レンズ

で分担し、 L_2 レンズで $1/50$ 、 L_1 レンズで $1/20$ とし合計で $1/1000$ とする。概算によれば、

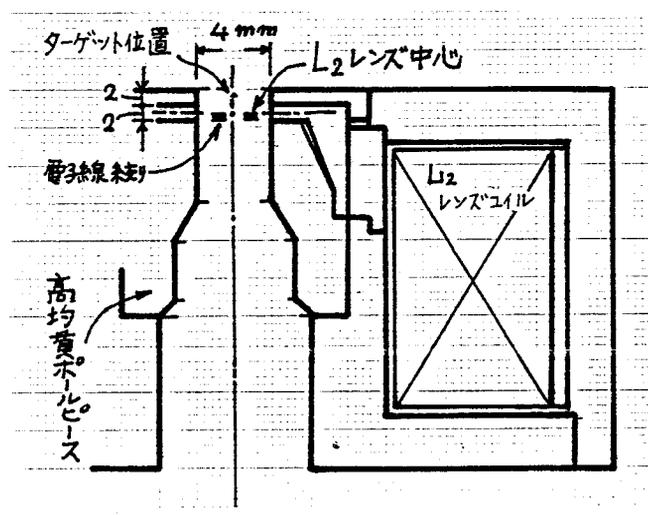


Fig. 2-7 L₂ レンズ中心部構造

L_1 レンズの焦点距離を約10mm前後に設定した場合 L_1 レンズの球面収差は最終結果に影響がない事が判った。以上の結果 2段縮少電子光学系の概要寸法は Fig. 2-8 に示すものとなる。

電子レンズ L_1 及び L_2 の動作条件には、Cosslett et al. (1957) のデータと同様に Fig. 2-9 に示されることき 適当な範囲がある。 図中、縮少率 M_2 は L_1 レンズ電流 $I_1=0$ の場合、すなわち レンズ L_2 単独

の場合の縮少率を示す。 L_1 レンズによるクロスオーバー像 d' (Fig. 2-8 参) が L_2 レンズ前焦点面に達

すると $I_1=I_{100}$ の場合となり縮少率の値は発散し その逆数である $1/M$ は極度に減少し光学像は急ぎはない。 I_{100} より更に L_1 レンズ電流を増加すると縮少率 $M_{1,2}$ は再び有限の値にもどり

$1/M_{1,2}$ は増加に転ずる。ターゲット上の電子線サイズ δ は減少する。 δ の変化は I_{100} の左右で急激に変わる様子を示す。 $I_1 > I_{100}$ では 2段縮少率 $M_{1,2}$ により高い縮少を行うことが可能となるが、 $I_1 > I_{opt}$ では δ は飽和して減少しない。これは L_2 レンズの収差の効果である。 I_{opt} の値は、薄膜ターゲット

の状態によって Fig. 2-8 に示す d_3 がわづか変化するので確定した値ではない。 ターゲットに流入する電流 I_t は d' が L_2 レンズの絞リ A_2 の位置にて最大ピークに達するので、その場合の L_1 レンズ電流は

Fig. 2-9 に見られるごとく、 I_{100} より僅かに小さい時である。 I_{opt} の値を見ただめるために、Ong Sing Poen

達はターゲットからの後方散乱電子が電子銃の近くで再び焦点を結ぶ性質を利用した。(Ong Sing Poen 1959, Ong & Le Poole 1957, 1958) ^{我々の} 予備実験ではターゲットからの反射電子を電子銃の近

くに置いた蛍光板上に結像させて目視観察を行った。反射電子線による焦点サイズの観察は、電子線による蛍光像が明るく目視しやすいが、電子線加速の金鏡体の構造が複雑性となる。この方法は X 線の線源サイズを確認する目的に対しては間接的な方法であるので、更に X 線像で確認する手向を

要する。我々は I_{opt} を求めるために X 線による直接的方法を用いた。 I_{opt} の近くでは微小な

X 線源が出来ているので 例えは 1500 \times 75 μ の金又は銀メッキした銅メッシュなどを試料とし X 線陰

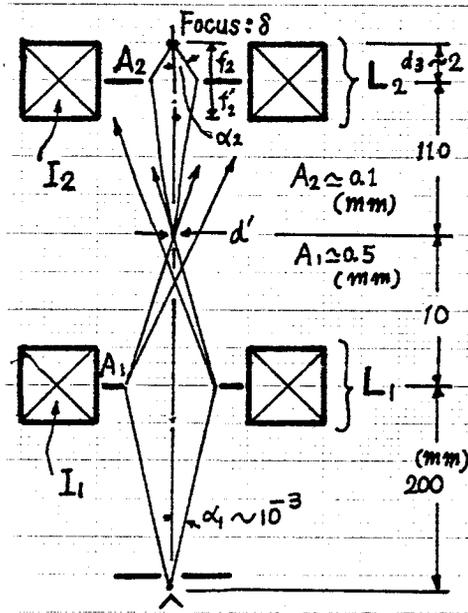


Fig. 2-8 2段縮小光学系の寸法と動作概略

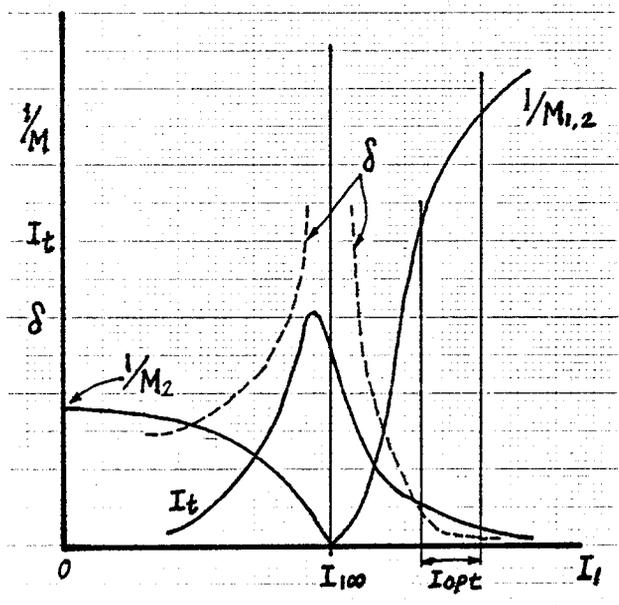


Fig. 2-9. L_1 レンズ電流(I_1)と縮少率(M)の関係

- I_t : ターゲット流入電流
- δ : ターゲット上電子束径
- I_{100} : L_2 レンズ前焦点面、 L_1 レンズ、~~無電~~が来る場合の L_1 レンズ電流
(L_1 によりクロスハ像)
- I_{opt} : 最適電流範囲
- M_2 : L_1 レンズ off により、 L_2 レンズのみ縮少率
- $M_{1,2}$: L_1, L_2 の総合縮少率

景の像を観察する。まず I_1 は I_{00} よりやや強めにし、ターゲットに流入する電流値を増加させ X 線強度を高め、観察用蛍光板上の X 線像を明るくする。次いで L_2 レンズを加減して^着コントラストの強い位置に設定する。次いで L_1 レンズ電流を増加させて X 線焦点サイズを小さくする。 I_{opt} の付近ではターゲットに流入する電子流が減るので X 線強度が下り蛍光板上の X 線像は見にくくなるが、再び L_2 レンズでピントを合せると、今度は焦点サイズがより小さくなるので、X 線像コントラストは向上している。ここで一番良い^{コントラストの}ピント位置は^{再び} L_2 レンズ電流を設定する。以上の操作を 1~2 度行う。 L_1 レンズの電流を増加させ、 I_1 が I_{opt} の範囲に近づくと、X 線像は暗くなり、目視では観察が出来なくなるので、ピントの前後 (L_2 レンズを可変する) で 3 枚ほど X 線陰影像を撮る。正確に X 線焦点のサイズを推定するためには電子顕微鏡用の高分解能写真フィルムを用いて、試料であるメッシュ像を撮影する。撮影後メッシュ像のエッジをフォトメトリで線源サイズの測定を行った。かくして、各条件での線源サイズにおけるメッシュ像の X 線写真を記録して置いた。日常のピント合せは、メッシュ試料をホラロイド写真機に ASA3000 の印画紙を装填してピントの前後で 3 枚ほど撮影し、写真像から X 線源のサイズを推定した。上記の方法により、ターゲット薄膜の交換、フィラメントの交換のたびに、又、使用する加速電圧を切換える度に、ピント合せを行い実験条件設定を行った。X 線テレビ装置などを用いればこの操作は容易になると思われる。

2-4 電源装置

電源装置は 4 種類を必要とした。1) 電子線加速用高圧電源 (5KV~40KV), 2) 電子銃フィラメントの加熱電源, 3) L_1 レンズ励磁電源, 4) L_2 レンズ励磁電源である。電源装置設計の重要因子は安定度である。高分解能電子顕微鏡では、観察試料像の撮影が通常秒のオーダーで行われるが、X 線顕微鏡の場合、電子銃光輝度及び写真感光材料の感度にも依るが、透過拡大陰影像を撮る場合でも分のオーダー、面折顕微鏡の場合時間のオーダー

の露出時間を要した。従って X 線源となる電子線の焦点を長時間に亘って安定に保つための電源装置に要請される安定度はかなり厳しい。時間経過に対する安定度、俗に言うドリフトは本駆力減少させると共に、

電子線焦点サイズに直接影響のある振動リフトも必要限界内にする事などが要請される。電源装置の安定性の目安は電子レンズの性質から決める事が出来る。Drummond (1950) によれば、電子レンズの焦点距離を

f , 電子線加速電圧を V , レンス励磁電流を I とすると、

$$f = k \cdot V/I^2 \quad \text{--- (2-11)}$$

ここで k は定数である。(2-11)式から焦点距離変動率 $\Delta f/f = \Delta V/V - 2\Delta I/I$ が得られるが、 $\Delta V, \Delta I$ に相関性が一般には無いので次式が得られる:

$$\left| \frac{\Delta f}{f} \right| \leq \left| \frac{\Delta V}{V} \right| + 2 \left| \frac{\Delta I}{I} \right| \quad \text{--- (2-12)}$$

レンズ焦点距離変化 Δf による電子線焦点のぼけ半径 Δr_c は Fig. 2-6 におけるレンズ L_2 の電子線ひらき角 α_2 を用いて $\Delta r_c = \alpha_2 \Delta f$, (Fig. 2-10 参) となる。 Δr_c を減少させると装置コストが上昇する事並びに球面収差によるぼけ r_s は依然として存在するなどの理由で、 $\Delta r_c = r_s$ に設定した。 C_s と f は大体同じ大きさに設定されているので次式を得る、

$$r_s = C_s \alpha_2^3 = f \alpha_2^3 = \alpha_2 \Delta f. \quad \text{--- (2-13)}$$

(2-13)式から焦点距離変動率 (2-12)式に対する目標値 $\Delta f/f = \alpha_2^3$ が得られる。

電子線加速電圧, レンス励磁電流ともに独立に変動すると考えられるので、(2-12)式の各項の寄りは同じと見積られる。 Fig. 2-10 で $\alpha_2 = 2.5 \times 10^{-2}$ とし次の目標値が得られる、

$$\frac{\Delta V}{V} \leq 3.1 \times 10^{-4}, \quad \frac{\Delta I}{I} \leq 1.6 \times 10^{-4}. \quad \text{--- (2-14)}$$

以上の考察は、電子線焦点の位置、大きさの変動要因をレンズの焦点距離のみに求めたが、この他に振動による機械的歪み、温度変化による膨脹・収縮などが独立に加わる。顕微鏡全体

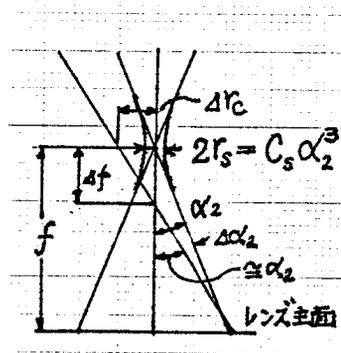


Fig. 2-10 Δf による電子線焦点ずれの大きさ

の構造材料は金と火葬青銅で、平均的熱膨張係数は $\sim 2 \times 10^{-5}/^{\circ}\text{C}$ であり、装置使用中に周囲温度の変動を含めて、鏡体各部に 10°C ほどの変化があると影響が現われることを意味する。

機械的振動なども皆無にすることは出来ない。鏡体は剛性が高いので比較的問題は無いと見られていたが、X線光学系である試料及び写真フィルムなどの相対的位置変動は無視出来ない。X線カメラ

長は通常 $\sim 1\text{m}$ オーダーで出来ているので、装置を設置する床の $\sim \mu\text{m}$ オーダーの振動も影響を持つことが

考えられる。したがって機械的、熱的、電氣的諸要因に等しい責任分担を求めると、(2-14)式に示さ

れる電氣的要因は更に20%乃至30%に縮小設定される、すなわち：

$$\frac{\Delta V}{V} \leq 6 \times 10^{-5} \sim 9 \times 10^{-5}, \quad \frac{\Delta I}{I} \leq 3 \times 10^{-5} \sim 5 \times 10^{-5}. \quad \text{--- (2-15)}$$

(電子加速電源)

5kV \sim 40kV (最大出力電流 1mA, 最大出力 40Watt) を連続可変とし、安定度 $\Delta V/V = 6 \times 10^{-5}$ を目標とした。電力規模が小さいので高周波励磁方式の電源を計画した。周波数 10kHz を使った。

共振出力を昇圧する方法として空芯コイルを用いたTV用フライバック方式も検討したが、出力の可変範囲が比較的大きいことなどの理由で6CA7のスクリーングリッド変調による密結合C級共振型自励共振方式を用いた。高圧トランスはTV用のフェライトコアを用い、コックロフト方式で3倍圧整流を行った。高圧トランス及び共振器は油浸した、Fig. 2-11に示すことである。出力電圧の安定化は負帰還方式とした。基準電圧 V_s にナショナル・マロー社の水銀電池を用いた。出力電圧を V_o 、帰還増中器の利得を A 、帰還率を β とすると、一般に次式が成立する：

$$V_0 = \frac{A}{1+A\beta} \cdot V_s \quad \text{--- (2-16)}$$

(2-16)式から直ちに出力電圧安定度が求まる。すなわち:

$$\frac{\Delta V_0}{V_0} = \frac{1}{1+A\beta} \cdot \frac{\Delta A}{A} + \frac{A\beta}{1+A\beta} \frac{\Delta \beta}{\beta} + \frac{\Delta V_s}{V_s} \quad \text{--- (2-17)}$$

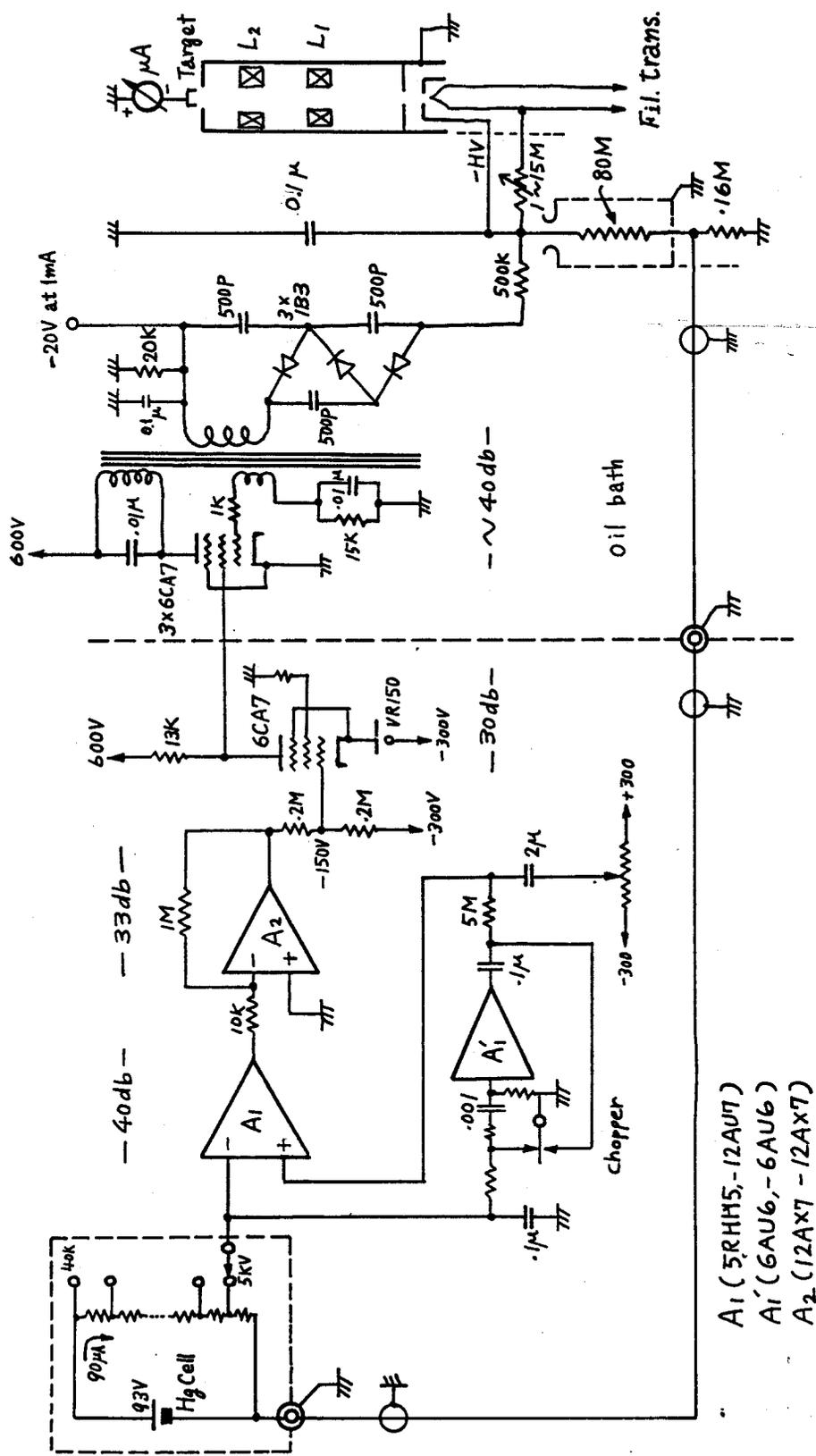
帰還が充分にかいている周波数領域では $A\beta \gg 1$, かつ各要素の変動は相関性が無いので:

$$\left| \frac{\Delta V_0}{V_0} \right| \cong \left| \frac{\Delta A}{A} \right| \cdot \left| \frac{1}{1+A\beta} \right| + \left| \frac{\Delta V_s}{V_s} \right| + \left| \frac{\Delta \beta}{\beta} \right| \cong \left| \frac{\Delta V_s}{V_s} \right| + \left| \frac{\Delta \beta}{\beta} \right| \quad \text{--- (2-18)}$$

と書くことが出来る。従って、 $\left| \frac{\Delta V_0}{V_0} \right| \leq 6 \times 10^{-5}$ とすると、電源構成要素の設計指針として、

$$\left| \frac{\Delta V_s}{V_s} \right| \leq 3 \times 10^{-5}, \quad \left| \frac{\Delta \beta}{\beta} \right| \leq 3 \times 10^{-5} \quad \text{--- (2-19)}$$

などの目標値が得られる。 ΔV_s の内容は、基準電源の変動分と、出力条件の変化並びに商用電源ラインの変化などにもとづく変動分の等価入力換算値(初段増中器入力換算)と初段増中器自身を持つ等価入力雑音などの和である。水銀電池の安定度は $\Delta V_s/V_s \sim 1 \times 10^{-5}/^\circ\text{C}$ であり、5KV時に $V_{s(5k)} = 10\text{V}$ になる様に設定した。電源系から加わる雑音等価入力を $200\mu\text{V}$ 以内に抑えるために増中器利得は合計で約140dbを計画した。出力ドリフトを抑えるために、キョウハニシキ変換器を用いたドリフト補償型の演算増中器を設計し、初段増中器の入力換算変動を $\sim 1\mu\text{V}$ にした。高周波リップル成分を抑制するために、高圧回路に $0.1\mu\text{F}$ の紙コンデンサを用いた π 型の平滑回路を構成し、40KV、1mA の最大出力時、リップル成分を $0.5\text{V}_{\text{peak}}$ 以下に抑えた。帰還率を与える電圧分割器には、 $\Delta R/R \leq 1 \times 10^{-5}/^\circ\text{C}$ の温度係数を有する金属皮膜抵抗器を用いた。160k Ω の抵抗体を500本直列にし、温度係数の偏差の均一化を計ったが、抵抗体の空間的配列がもたらす局所的な温度勾配が存在し、抵抗体単体の温度係数は実現出来なかった。以上の結果は Fig. 2-11 に示すごとくであり (2-19) 式の目標値を満足した。



A_1 (5RH5, -12AX7)
 A_1' (6AU6, -6AU6)
 A_2 (12AX7 - 12AX7)

Fig. 2-11 電子線加速電源

(レンズコイル反カ磁電源)

電子レンズ L_1 と L_2 のコイル巻線仕様は、最大起磁力5000AT, 巻線回数 25000 全直流抵抗 $2k\Omega$, 反カ磁電流最大 200mA などであった。操作の目的から L_1, L_2 レンズ共 $\sim 0mA \sim 200mA$ の間を連続可変とし、電流値再現性を確保するために、多回転ポテンシオメータを併用し、 $40\mu A$ 毎の設定が可能にダイヤル直読式とした。反カ磁電流安定化の方法は、負帰還方式であり、安定化計画は電子加速電源の場合と同様であった。レンズコイルの温度上昇は電流印加時約 $40^\circ C$ 上昇すが定常的溫度変化は数 $^\circ C$ 以下であった。電流検出抵抗 (Fig. 2-12 参)は $450\Omega \cdot 40Watt$ ($4.5k\Omega \cdot 4Watt$ 型金属巻線抵抗器, 温度係数 $1 \times 10^{-5}/^\circ C$ 10本並列)を用い、空冷で最大温度上昇 $40^\circ C$ 程度で使用した。

(フィラメント加熱電源)

電子線発生用の電子銃のフィラメントは、通常の電子顕微鏡で用いられるこびき形状のV字形に削れたタングステン線 ($0.15mm\phi$)を用いた。フィラメント部の常温における直流抵抗約 1Ω , 加熱電流 3.5A, 加熱電力約 15Watt, 電力は空芯トランスを介し、200kHzの高周波供給した。発振器は $Uy 80T$ を用いたC級自励発振器を用いた、Fig. 2-13に概略図を示す。

フィラメント電流の変化は直接電子線焦点の安定度に影響を持たない。フィラメント加熱条件が二極管の空間電荷制限領域、すなわち、フィラメント電流に対する電子放射電流の勾配が飽和する点で、クロスオーバーサイズが安定して小さくなる部分に設定されるからである。更に、電子銃には電子ビーム修正の役をするウェーネルト電極が有り Fig 2-2 に見られる如く、電子加速系は三極真空管と等価であり、ウェーネルト電極は三極管の制御グリッドと同価である。加速用高電圧は直接ウェーネルトに供給され、高抵抗を介してフィラメントと接続されるため、電子放射時ウェーネルトの電位はフィラメントに対して、

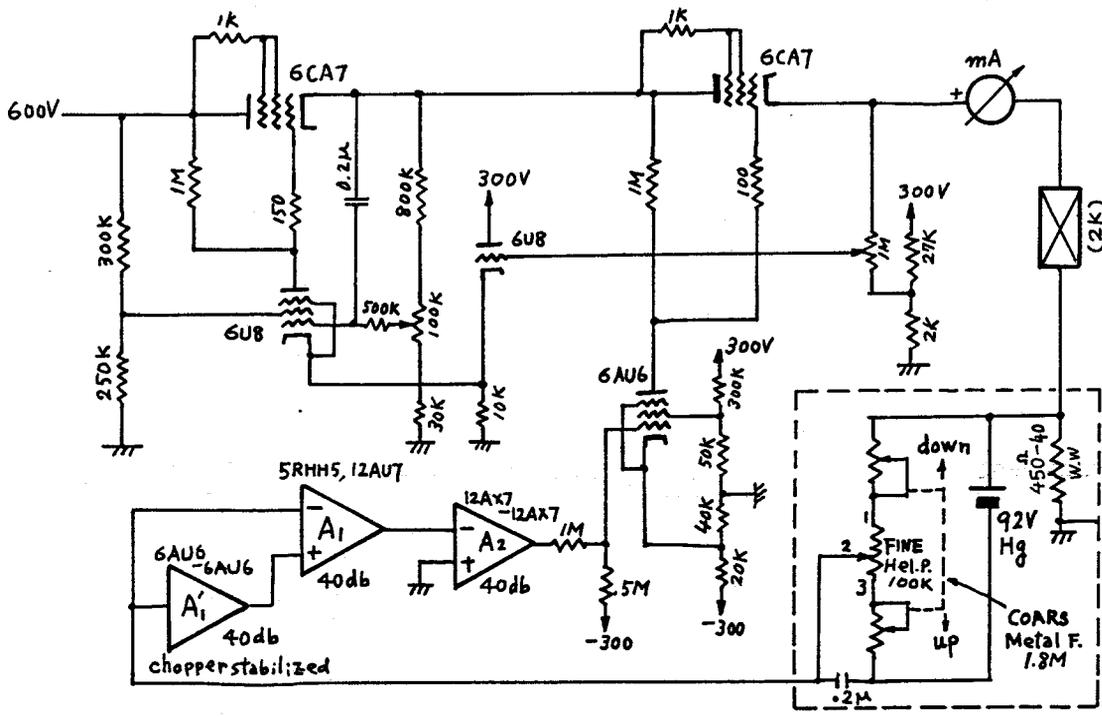


Fig.2-12 レンズコイル励磁電流安定回路

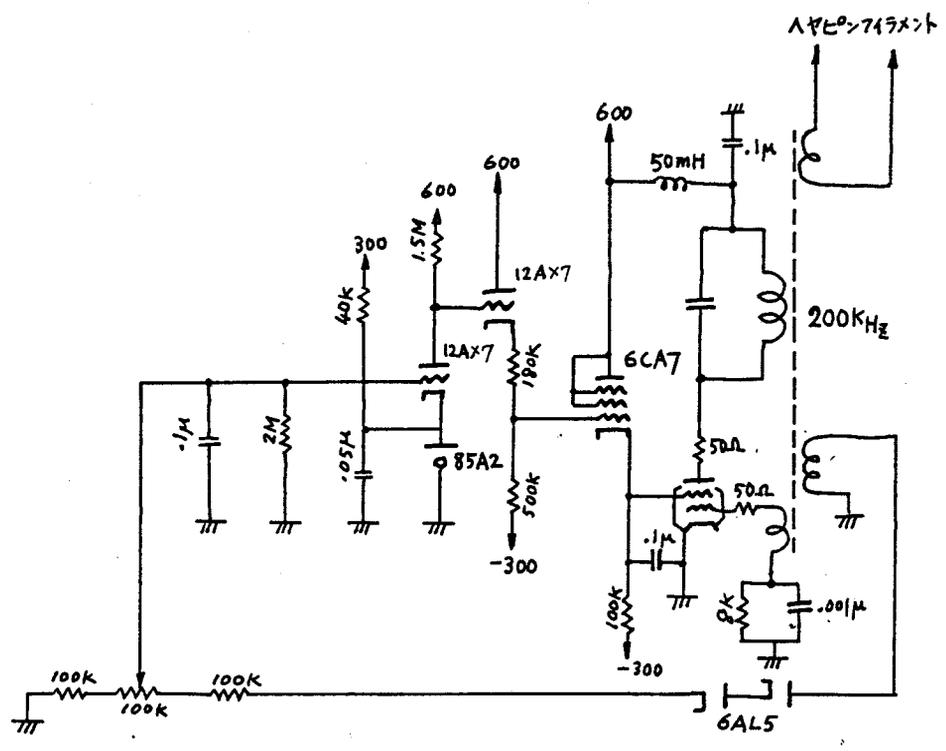


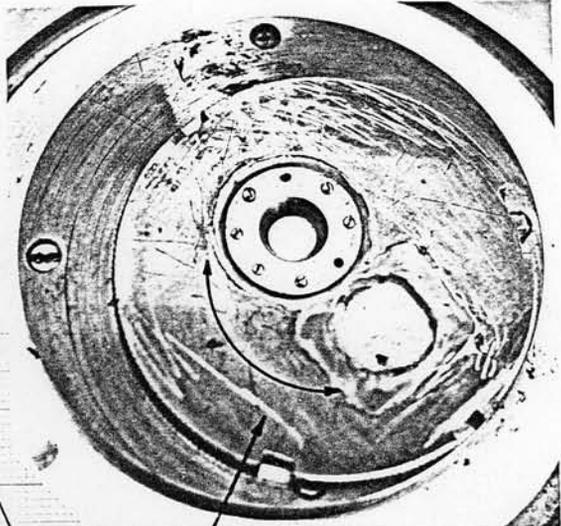
Fig.2-13 電子銃フィラメント電源

-100 ~ -400 V 負に偏倚した自己バイアスが働く構造としてあるため、放射電流には自己安定作用がある。フィラメント電流の制御と安定化を一層有効にするため、負帰還方式が採用されている。安定化基準電圧には電圧安定管 85A2 が用いられた、Fig. 2-13。

2-5 電子ビーム軸合せ装置

電子レンズの性能は球面収差係数によって代表されているが、これを小さくするために、石磁界形レンズのポールピース(Fig. 2-7)には特別に良い、土質で残留磁気の少い、磁気異方性の少い材質を用いる必要があり、東北金属(株)製の調質された電子顕微鏡用軟鉄を用い、非常に注意のもとに加工されたが、機械的な中心軸と電子光学的なレンズの中心軸は一致してなかった。電子ビーム軸とレンズ中心を一致させるために Fig. 2-14 に示す装置を試作した。

レンズ軸の調整の方法は次のごとくである。まず L_2 レンズの給電を閉じておき、 L_1 レンズの電流を切り、 L_1, L_2 レンズの機械的中心を大体合わせておく。電子銃から放出された電子ビームは L_1 レンズを通り、 L_2 レンズに入るが、もしも電子ビームの軸と L_2 レンズの中心軸(電子的)が合致していれば L_2 レンズの電流変化、すなわち L_2 レンズの焦点距離変化によってもなると、Fig. 2-14 に示す螢光面(螢光面が電子軸の中心に来る様に回転台を設定しておく)では電子衝突で発生する明るい円形のビームスポットは同心的に半径の増減を行うだけである。ビーム中心が L_2 レンズの軸を外れると L_2 レンズの強弱変化に応じて、ビームスポットが中心まわりにぐるりと螺旋を描くように廻る。そこで L_1, L_2 レンズに対して、相対的に電子銃を傾けて電子ビームをレンズ軸に一致させるように微調整を行うことにより、同心的な変化が得られるようにする。次に L_2 レンズの電流を切って、 L_1 レンズの電流を加減して同様にビームスポットが同心的に動くように L_1 レンズの機械中心を電子ビーム軸に直角方向に微調整させる。かくして L_2 レンズ - L_1 レンズ - 電子銃の電子ビーム軸を一致させる。次に L_2 レンズの中心軸上に給電を挿入し、上と同じように L_2 レンズ



軸合せ時には蛍光膜面が電子ビーム軸に来る

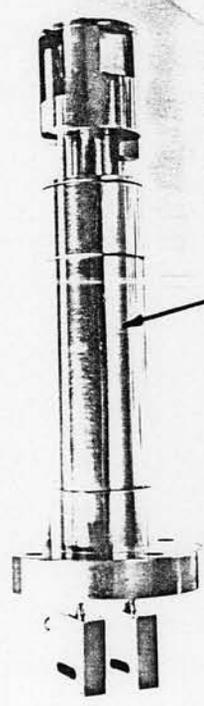
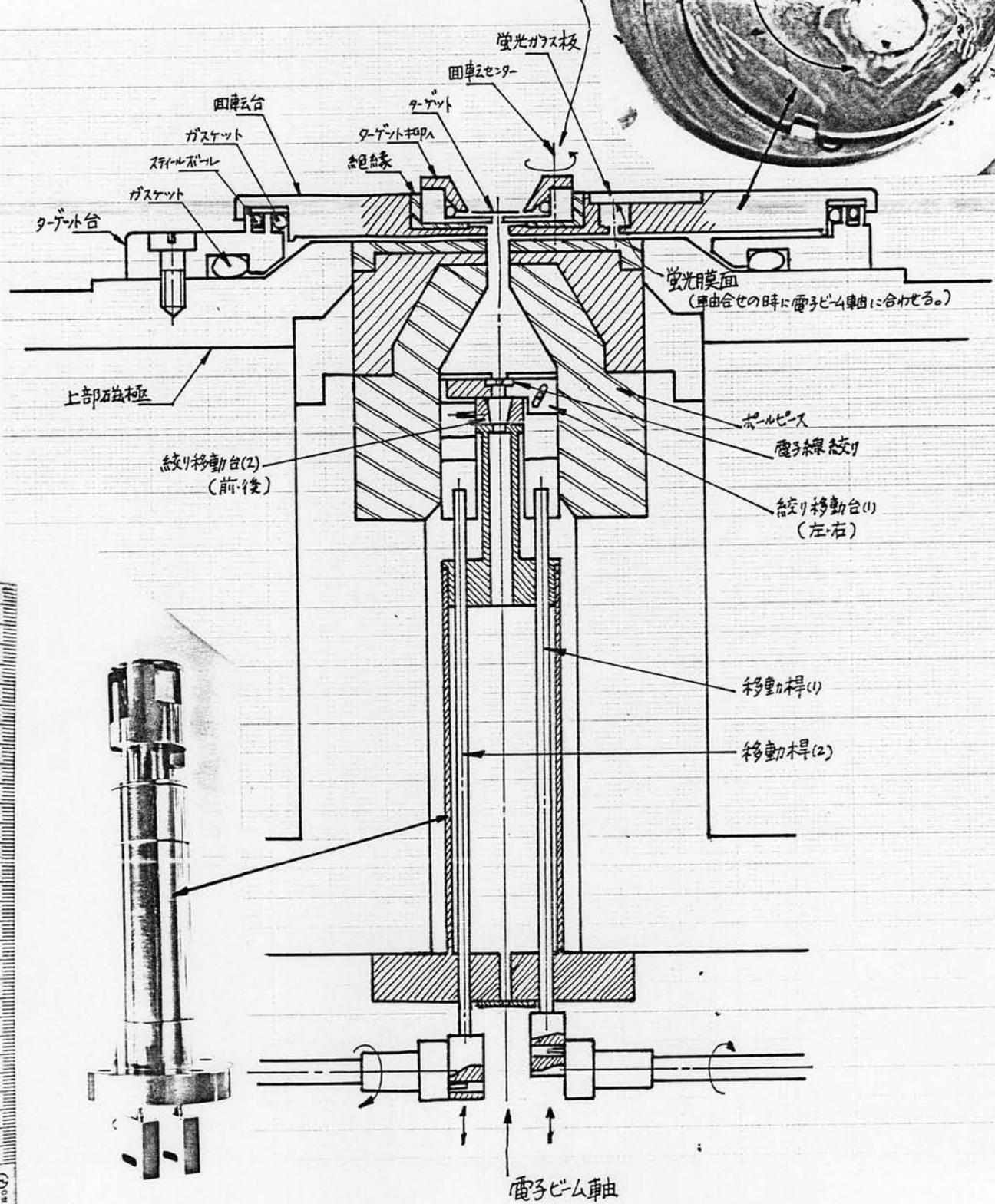


Fig.2-14 電子線軸合せ装置

Lレンズを動かして電子ビームスポットが同心円的に変化する位置と、絞りを前後左右に微動して探す。

この様にして、電子ビーム系の軸は完全に合致させることが出来るが、時に軸が外れて来ることがある。電子レンズ系は剛性が高いので安定しているが、不安定性をもたらす要因がある。一つは電子銃の熱的変位、もう一つは真空系内で発生するコンタミネーションである。電子銃の熱的変位の原因はフィラメントの加熱(~ 15 Watt)が原因である。通常電子銃は負の高圧電源と接続されているので、周囲の鏡体は電気的に絶縁されている。電気絶縁物は一般に熱的にも伝導度が低く、又電子銃は真空中に在るので対流による熱の放散も少ない。従って電子銃部は、フィラメント電力印加後定常状態に入るまで(~ 1 時間位要した)変化することは避けられなかった。真空排気系は油拡散ポンプと油回転ポンプを使用した。

高真空系の油拡散ポンプの作動液には蒸気圧が $\sim 10^{-9}$ mmHg の DC 104 (ダウコーニング社)を用いている。真空のガスケットには主にバイトン製のゴム製 Oリングを用いた。真空系内には炭化水素系残留ガスが存在し、電子ビーム軸周辺にコンタミネーションとして付着した (Kozaki, Hashimoto, Ohkawa 1968)。電子ビームによる残留ガスの分解がコンタミネーションを促進させる様であった。コンタミネーションは電子ビーム系に対し攪差として働くので、長期間の電子光学系の使用を困難にした。従って電子加速系鏡体内の掃除が不可欠となり、その都度軸合せを必要とした。軸合せ終了後 Fig. 2-14 に示す回転テーブルを廻すと、真空を破らすに X線ターゲットを電子ビーム位置へ移動することが出来る。ターゲット部は電子光学系鏡体(接地電位)から電気的に絶縁されているので、ターゲットへ流入する電流を測定することにより、X線強度のモニターを行うことが出来る。

2-6 X線源サイズの測定

ターゲットに収束した電子ビームがターゲット中の物質原子と相互作用を行い青争止するに至るまでの過程は多数の研究者によって実験的、理論的に究明されている。(Archard & Mulvey (1963),

Shinoda et al. (1969)。ターゲット金属中で電子が青争止するまでに画く軌跡は Shimizu et al. (1975)

連によりモンテカルロ法で究められ、実験と良く一致する結果が出ている。それらの結果によると電子とターゲット中の原子との多数回の非弾性散乱の結果、球根茎の根の形をした球形に近い電子の軌道分布が考察されている。

Fig. 2-15。しかし非弾性散乱で失われる電子の運動エネルギーの中、X線の発生に寄与する割合は小さいので、

電子の存在する範囲と制動X線、特性X線の発生領域が同じであるとは考えられない。X線源の形状は衝突過程でX線発生の確率的プロセスがわかればモンテカルロ法で推定することは出来ると考えられている。

(Shimizu 1975)。薄膜ターゲットでは膜厚が電子の拡散レングスより薄い時もあり、条件は複雑であるので、

筆者らはX線源をターゲットの外側から観測することによってその形状の測定制定を行った。

一般に用いられるX線源の測定制定の方法は、ピンホール導線の原理である。線源より充分に小さい孔を絞りを透過するX線を真板上で撮影すれば良い。しかし測定制定対象が $0.1 \sim 1 \mu\text{m}$ の直径であるので

この方法で測定制定出来ず、形状のわかっている微細な物体の陰影撮影を

X線で撮影し、物体像のハリのほけ具合から、そのX線源の大きさを推定制定する方法を採用した。

二つの方法を用いた。一つの方法はタングステン、及び金の $0.1 \sim 0.5 \mu\text{m}$ 位の粒子を分散させた試料のX線透過

拡大像を撮影して、その像の中の分離と認められる二つの粒子間隔から線源の直径を推定制定する方法

である(応用物理学会 昭和39年10月名古屋 9a-K-11)。もう一つの簡便な方法は、タングステン線源($0.1 \sim$

$0.15 \text{ mm} \phi$)のX線陰影撮影を撮影し、その立端縁のほけからX線源の幅を測定制定するものである。

前者は直接的であるが、分散試料を作るのが容易でない。後者は間接的であるが容易であるので

で実用的なX線源測定制定はこの方法に依った。撮影物体の形としては、可視光ではナイフエッジが好まれる

が、X線の場合は透過光によるほけを考慮に入れない場合はならないので、円形断面のタングステン線の

の方が良い結果をもたらした Fig. 2-16。

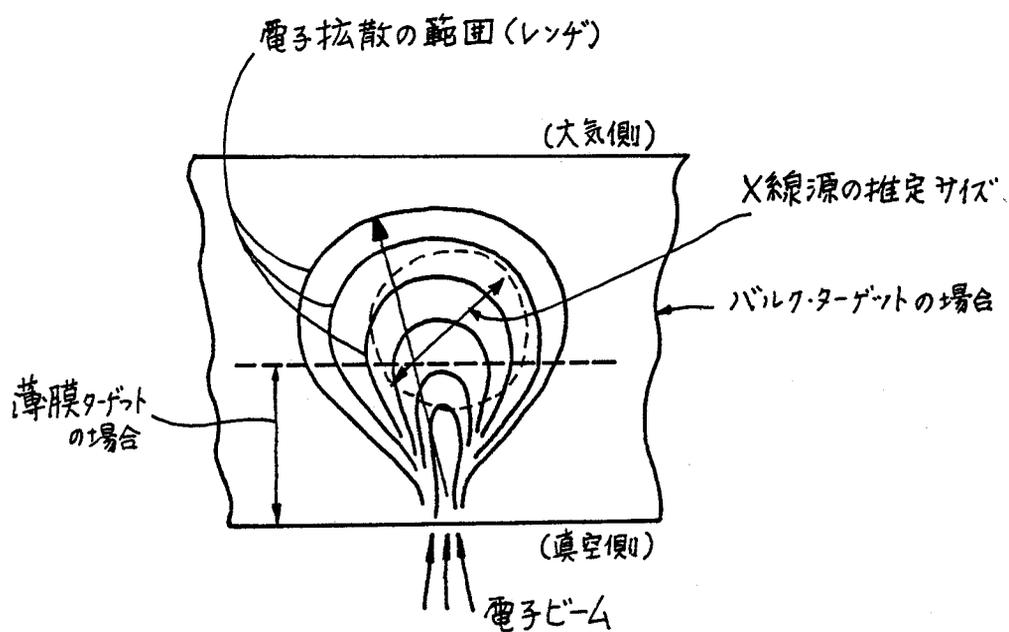


Fig. 2-15 球ねぎ状の電子の拡散とX線源の位置

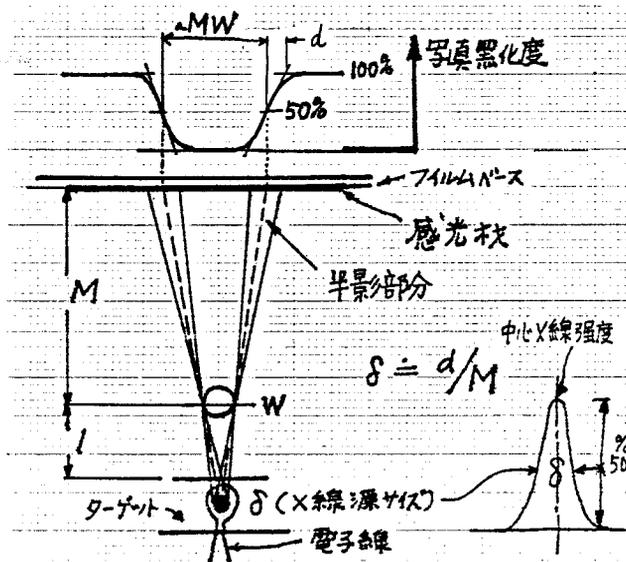


Fig. 2-16 ぼけの量 d の定義と焦点サイズ δ の関係

半影部分が出る理由は、図に示したX線の強度分布、透過X線、及び2-7節で説明するフレネル干渉線である。後二者は僅小であるので、近似的にはX線源サイズ δ によるぼけが主要となる。写真黒化度をフォトメーターして、図に見られるごとく、黒化度曲線の接線からぼけ量 d がもとまり、幾何学的手法からX線源サイズ δ が求まる。

2-7 X線陰影拡大像

上述の方法で作った微小真空X線源 $0.3 \sim 1 \mu\text{m}$ を用いて撮影した写真を Fig. 2-17, 18, 19 に示す。

Fig. 2-17 は糸絹の繊維である。KBr の水溶液に浸して、わがながらコントラストを高めた。白い部分の部分は立端縁で生じた Fresnel の干渉縞である。

Fig. 2-18 は兔の肺の気胞を撮影したもので、試料は数 mm 立方の大きさであるが、全体的に焦臭が合っている。これは焦臭深度の深さを示すと同時に、試料を数 mm ずつに撮影した立体撮影の例である。

生物体は水分含有量が多くコントラストが付き難いので、重金属塩などによる造影とか凍結乾燥法などが用いられるが本例は気胞の多い生体なのでその処理はしていない。乾燥による収縮の方が向悪であった。

Fig. 2-19 は植物の種子 (Portulaca まは"ほたん") の透過拡大像である。

これらのX線陰影拡大像は光学顕微鏡より高い分解能で物体の輪郭および内部構造を観察することが出来ることを示しているが、試料全体にピントが合っているので倍率をきつくと決めるためには立体観察が不可避となる。現在の装置では撮影時間が分のオーダー必要なので、その間試料を青停止させておかなければならない。したがって、生物試料の場合には、周囲を密閉し、乾燥による試料の変形などにも注意を要する。

重金属による造影などもコントラスト増強には有効であった。

撮影条件がこれより、Fig. 2-17 のごとくにフレネルの縞が見られる。これは高分解能コントラストを得る場合のさまたげになる。フレネル縞の高さ W_f は、試料とX線源の距離を b 、X線の有効波長 (2-8節参) を

λ_{eff} とすると試料の位置でのほけ中は：

$$W_f \doteq (b \lambda_{eff})^{\frac{1}{2}} \quad \text{--- (2-20)}$$

で求められる (Cosslett, 1960)。 $\lambda = 1 \text{ \AA} = 10^{-8} \text{ cm}$, $b = 10 \mu\text{m} = 10^{-3} \text{ cm}$ とすると $W_f \doteq 300 \text{ \AA}$ である。

ならば $b = 1 \text{ mm}$ 位の所に試料が置かれると $W_f \doteq 3000 \text{ \AA} = 0.3 \mu\text{m}$ とかなりおぼろげになる。

このフレネル縞は不可避的に生じるので、この干渉縞を有効に用いて更に分解能を高めようとする試み

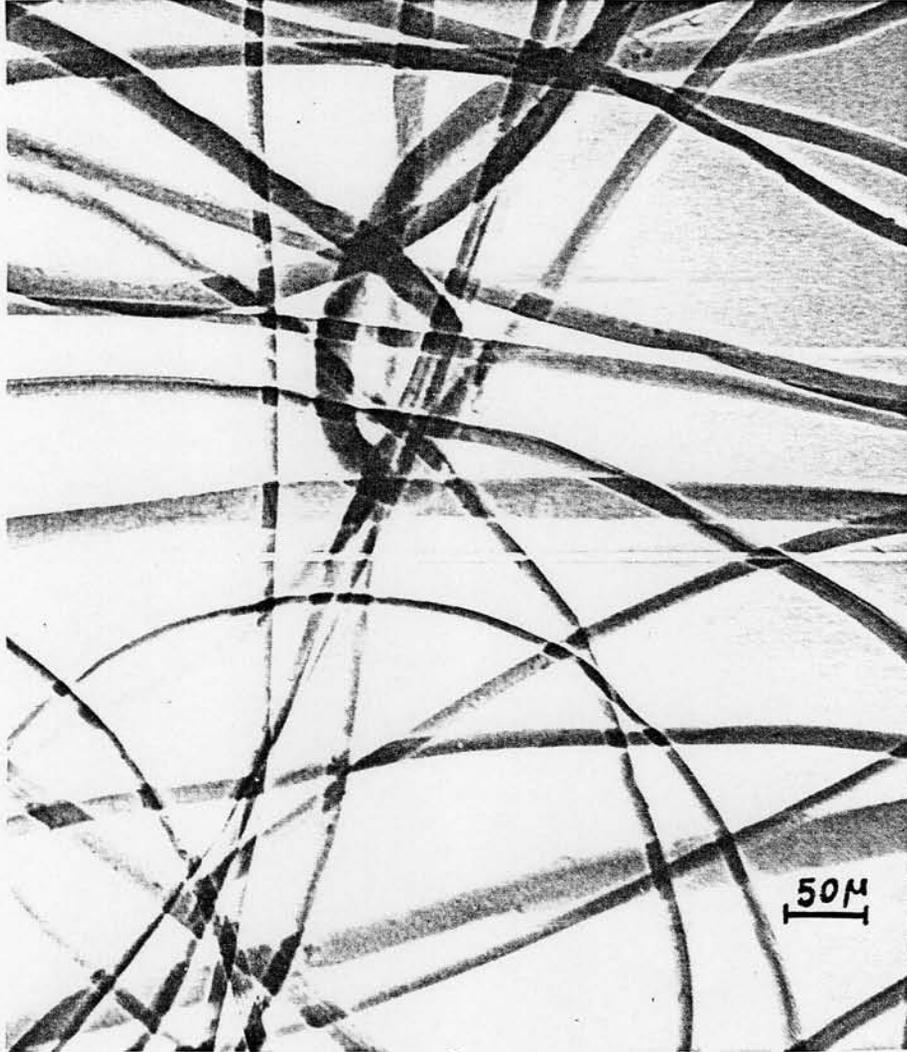
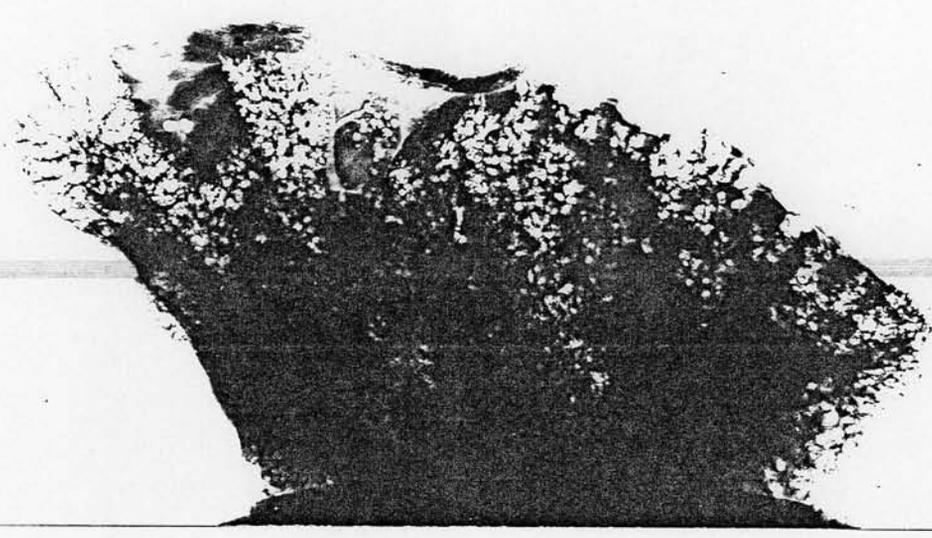


Fig. 2-17 Silk fiber

10KV 0.1 μ A exp. 2min Fuji-FG

R



L

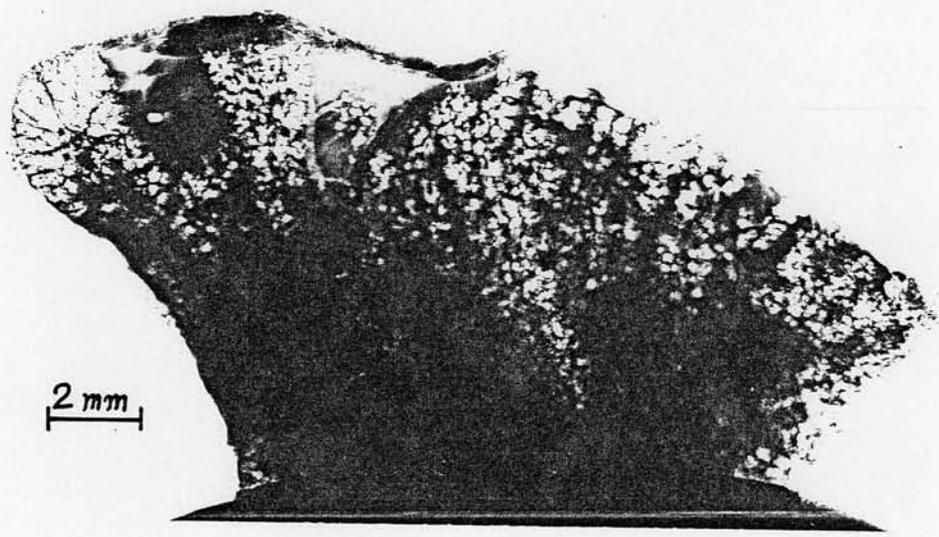


Fig.2-18 Rabbit Lung.
30KV 5 μ A exp.4min SAKURA-R

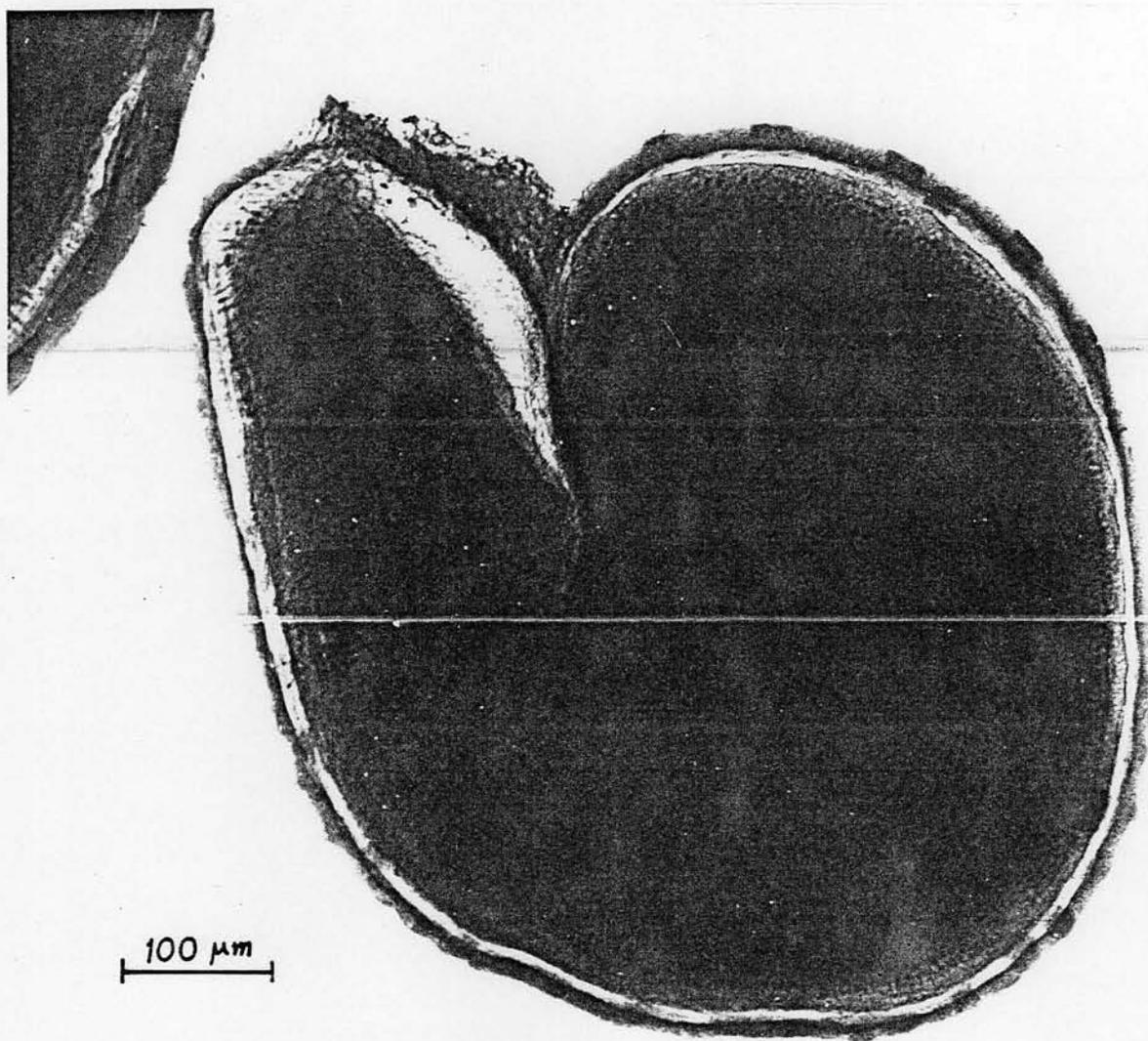


Fig.2-19 Seeds of PORTULACA
5kv 1 μ A, exp.5min. Fuji-FG

が提案された。(Baez & EL-SUM 1956) この目的のためには出来るだけ長波長のX線。例えばAlK α ($\sim 8\text{\AA}$) のごとき単色X線で透過性による像のぼけを減少させ、かつフリンジの析を明瞭に撮影して、その像の状態から純フリンジ像だけを電子計算機などを用いて画像処理的に取り去り、真の物体像を得よと云う方法である。この方法は分光スペクトルの解読、X線トモグラフィなどの分野ではすでに実用化の域に達しているが、^(山下, 南 1972)不可能ではないが、長波長X線は透過力が弱まり、物体の立体像を得る目的からは遠ざかる。又X線発生効率も、短波長の場合より低下するのでX線像が暗くなり観察は困難である。

2-8 X線顕微鏡用 試料の取扱。

一般に顕微鏡で物体を観察するには、目的とする部分をいかに上手に小さく切り出すか、と云う試料作製技術が重要な因子を占めている。X線顕微鏡の場合、X線の透過力が高く、焦点深度が深いので見過ごし易い。X線顕微鏡特有の試料作製法がある。Contact Radiographyの普及の影響で projection法も一種の透視装置と見做す向きもあるが、以下の所説で明らかになるごく微小試料内の観察が本来の目的である。

X線は透過力が強いが、反面、物体との相互作用が弱いので、X線に対する吸収率の高い造影剤を用いたり、真空乾燥を防止するために湿度の制御、凍結乾燥法などの通常の顕微鏡に用いられる技法は有効である。使用するX線の波長と、試料の厚さと試料の構成元素の間に次の如き関係がある。

試料のX線透過方向の厚さを、使用するX線の有効波長に対するその物質を構成する元素の線吸収係数

μ を用いて $t = 1/\mu$ を一つの至験的な目安にしている。例えば、20KVの加速電圧で撮影する場合、

発生するX線の最短波長(\AA)は、

$$\lambda_{\min} = \frac{12.4}{20(\text{KV})} \approx 0.6(\text{\AA}) \quad \text{--- (2-21)}$$

と求まる。 $\lambda_{\min} \sim 3\lambda_{\min}$ の間にターゲット金属の K α , L α 線が無い場合には、次の有効波 λ_{eff} を目安に用いる。

$$\lambda_{\text{eff}} \approx 1.5\lambda_{\min} \approx 0.9(\text{\AA}) \quad \text{--- (2-22)}$$

各物質に対する μ はこの有効波長に対する μ を用いる。代表的な物質とX線波長に対する

$1/\mu$ の値を Fig. 2-20 に示した。

物質のX線に対する質量吸収係数 M_p は、その物質の密度 ρ を用いて 線吸収係数 μ は、

$$\mu(\lambda) = M_p \times \rho \text{ であり、Fig. 2-20 に見られるごとく 吸収端波長では不連続的変化をする。}$$

$1/\mu$ の値の意味は、透過X線の強度が入射X線強度の $\frac{1}{e} \approx 0.367$ 、すなわち約40%に低下する試

料厚を意味する。経験的な値である。又、^{X線吸収強度差で}経験的に検出出来るコントラストの限界は5%の変化と言われて

るので、^{試料内に含まれる}目的とする観察異物の大きさが推定出来る場合、切り出す試料片の厚さは、その目的物の

大きさの20倍以下が良い。試料が単一物質元素でなくて、化合物、又は混合物である時には有効

吸収係数を次の方法で求める。試料片の構成元素と重量組成比と構成元素の質量吸収係数を

それぞれ、 λ, w_i, M_{pi} と記すと、合成された等価的複料吸収係数 M_{peff} は：

$$M_{peff} = \sum_{i=1}^n w_i \cdot M_{pi} \quad \text{---- (2-23)}$$

で求まる。同じ材料にして重量組成比を用いて 等価密度 ρ_{eff} を求めれば、試料片の等価線吸収

係数 M_{eff} は：

$$M_{eff} = M_{peff} \cdot \rho_{eff} \quad \text{---- (2-24)}$$

などで計算出来る。

2-9 試料の微動装置とフィルムカセット

0.1 μ m~1 μ m の分解能を目標として電子加管用鏡体と電源を安定に製作したが、同じ配慮は試

料の微動装置と撮影用のフィルムカセットなどのX線光学系にも拂われた。試料の微動装置は

Fig. 2-21(a)^(b)に見られるように、鏡体上部構造体、ターゲット部と密着するように設計され、周囲の振動による

不具合が出来る限り生じない構造を採った。試料装置は密閉箱の構造をしており、内部を真空排気

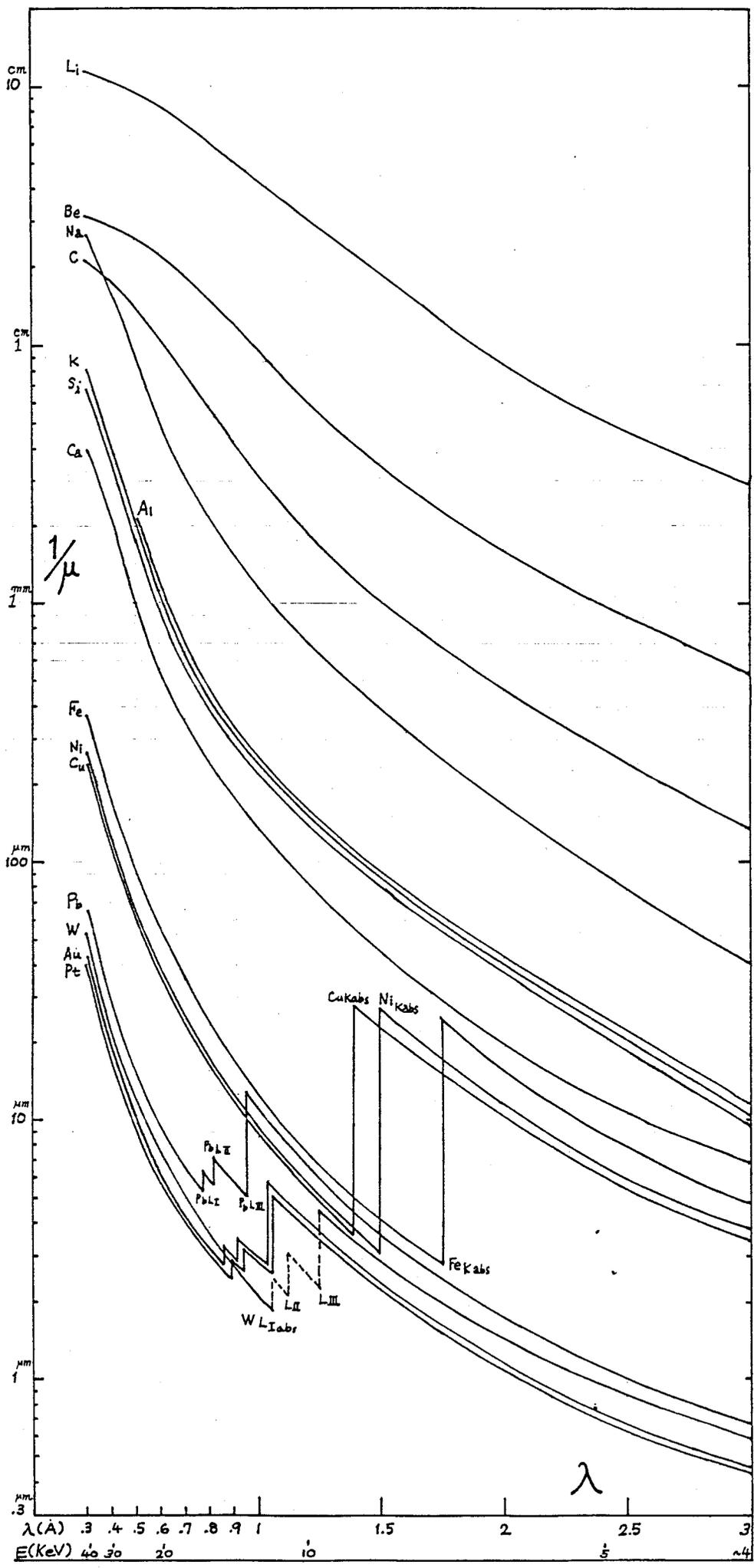


Fig. 2-20 $1/\mu$ の目安 (Liebhafsky et al. 1960)

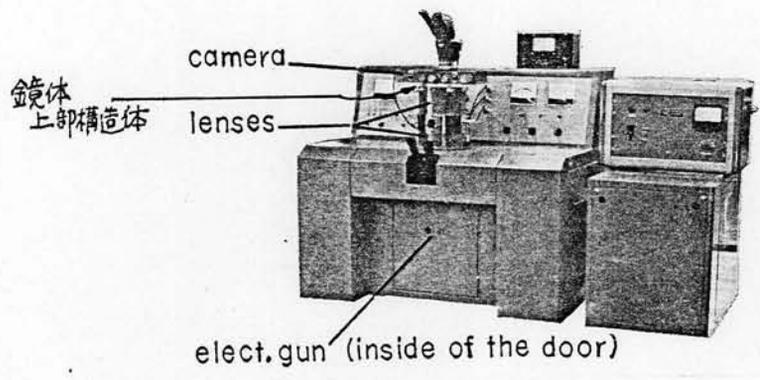


Fig. 2-21 (a)
試作X線顕微鏡
(Kosaki, Hashimoto, OHKAWA (1968))

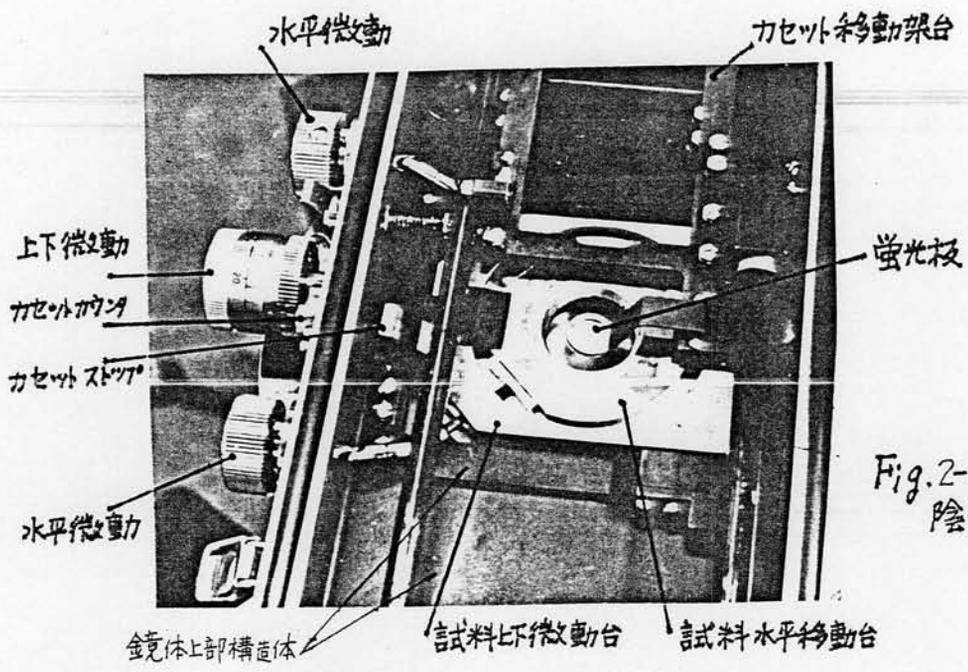


Fig. 2-21 (b)
陰影顕微カメラ

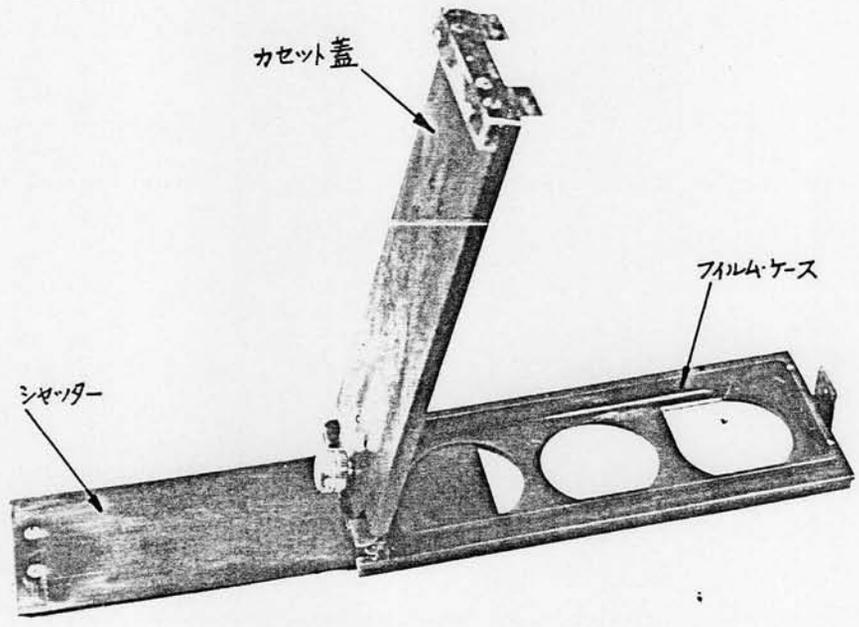


Fig. 2-22
フィルムカセットの構造

或は He ガスなどの雰囲気ガスで充満させる事も可能にした。又試料の取扱いが容易に行えるように、上部の蓋は全て取外せる構造とした。Fig. 2-21(b)は蓋を取外したことを示す。Fig. 2-22は使用したカセットであり、これを試料装置の側方から挿入し、撮影中は振動を防ぐように固定した。露光は図に見られる挿込式のセッターでフィルム前面を開いて行った。この試料台とカセットは専ら X 線陰影の拡大像を撮る目的で試作したもので、顕微鏡回折を行うためには別の仕組みを必要とした(第三章参照)。拡大像の倍率は Fig. 2-23 に見られる通り純幾何学的なものである。ターゲットとフィルム面までの距離は約 3 cm であるので 100 倍の撮影を行うには、X 線源と試料の距りは約 0.3 mm, 1000 倍の撮影を行うには 30 μm まで試料-線源距離を小さくする必要があった。後者の場合にはターゲットの上に直接試料を載せる様な手法となる。例之は Diatom rbc の撮影 (Kozaki, Hashimoto, Ohkawa 1968) rbc はこの手法であった。通常は $\times 30 \sim \times 50$ 倍で撮影し、その複写像を $\times 5 \sim 10$ 倍に引伸して観察に供した。光学顕微鏡に比べ焦点深度、視野共に広いが、Fig. 2-23 に見られる様に撮影される範囲は X 線源-線の内側にあるので、高倍率になれば視野は反比例で狭くなる。

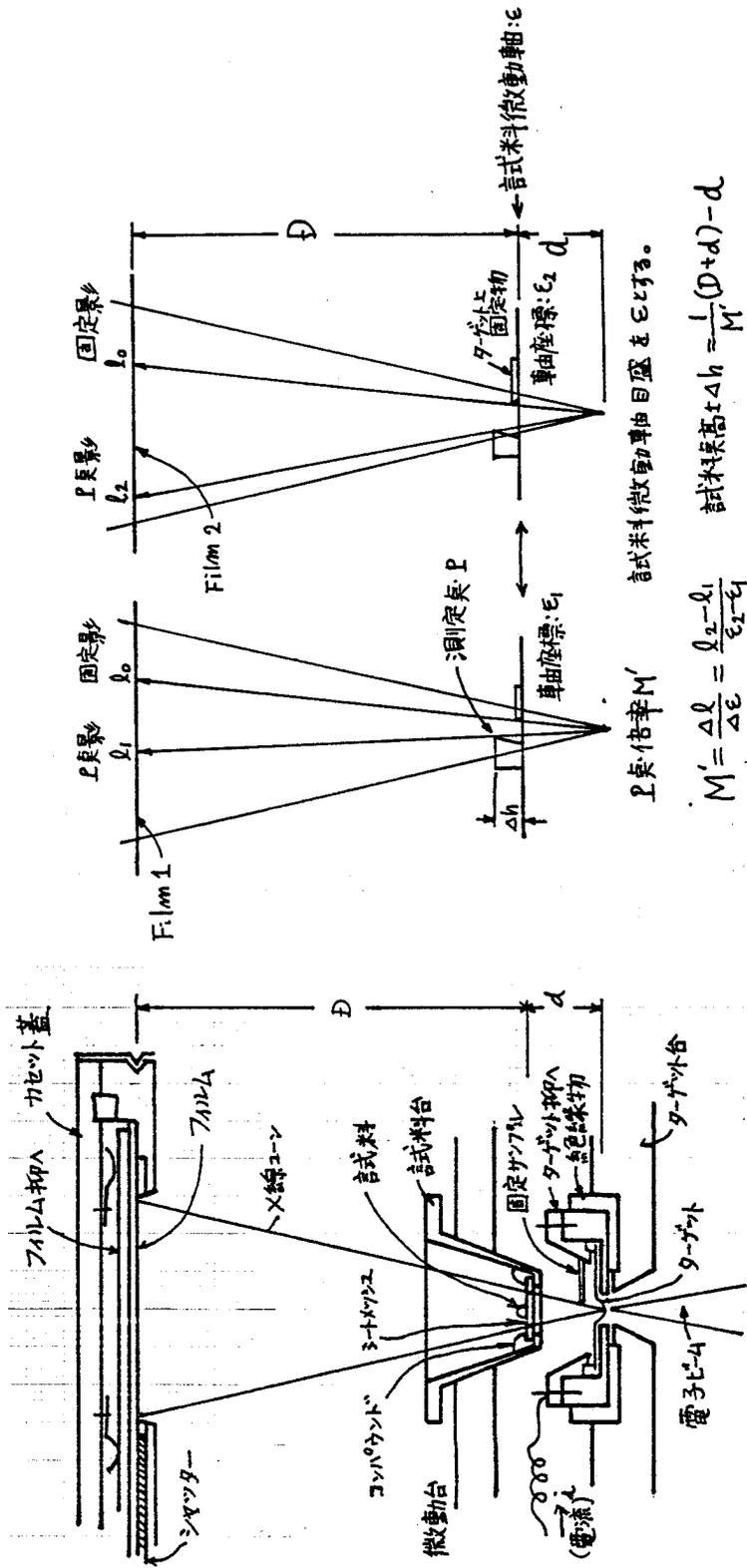
拡大率の決定にさいして、通常は寸法の半っている。例之は電子顕微鏡金鏡用のシートメッシュなどと言者に撮影し、シートメッシュの拡大率で倍率を定義するが、シートメッシュ上に載せてある試料内の点の倍率とは異っている。従ってこの試料内部点の撮影倍率は次のように決めた。

Fig. 2-23 に見られるごとく、ターゲットに固定した試料の陰影像と試料の像を一度撮影し、かつ試料の微動を行って再度撮影して、像の動いた量から撮影倍率を決めた。

$$\text{倍率} = \frac{\text{写真上で特定点の移動した距離}}{\text{試料自体動量}}$$

$$= \frac{D+d}{d}$$

--- (2-25)



P反倍率M' 言式材料微動軸目盛をεとする。

$$M' = \frac{\Delta l}{\Delta \epsilon} = \frac{l_2 - l_1}{\epsilon_2 - \epsilon_1}$$

$$M' \Delta \epsilon = \Delta l \quad \text{言式材料高さ} \Delta h = \frac{1}{M'}(D + d) - d$$

Fig. 2-23 X線陰影拡大カメラの構造原理と試料尺倍率、高さの測定法。

2-10 X線像撮影用写真材料(陰影拡大用)

一般に使用されるX線用写真フィルム材料は大きく分けて三種類存在する(Morimoto & Uyeda 1963)。医療用、工業用、及び高分解能透過写真用などである。いずれも直接X線光子に露光するもので医療用の間接撮影用などは含まない。一般的性質は透過力の強いX線を効率よく撮影するために、感光銀粒子の粒径は \sim 数 μm 前後有り、その乳剤膜の厚さは $15\sim 30\mu\text{m}$ あり、厚さ方向の露光量で感光度を補っている。更に感光度を高めるために、フィルムベースの両面に乳剤を塗布した両面塗布のフィルムが使用される。例えば工業用のSAKURA N, R, RRなどは全てこの型のフィルムである。この様に約 $60\mu\text{m}$ 位の乳剤膜を用いても、 $30\sim 40\text{kV}$ で発生するX線を感光膜で完全にStopすることは出来ず、フィルムを2 \sim 3枚重ねて撮影しても透過写真が撮れる場合もある。感度を増加させるために感光銀粒子の粒径を大きくしたり、重金属粒子を混合して、二次的に発生する蛍光による蛍光増感法なども用いられるが、このような写真材料を用いた場合には直接倍率10倍以上で撮影しても、写真の粒状性が目立つので、高分解能写真用には不向きである。

従って、高分解能写真を撮影するためには、医療用、工業用はあまり用いられず、高分解能専用=間接塗布したX線写真フィルム、例えば"Fuji Soft-EX"などを用いる。この写真は $\sim 0.1\mu\text{m}$ 位の粒状性を持つX線フィルムであり、安全光下で取扱えるので用い易いが、フィルム基材の厚さが $100\mu\text{m}$ 位で、安定性に欠ける。又、乳剤膜の厚さが薄いため感度は工業用の $1/3\sim 1/10$ である。

X線用フィルムでは無く、電子顕微鏡用の高分解能フィルムでFuji-FGなるフィルムがある。このフィルムはSoft-X-Ray用と同程度の感度と粒状性を有し、そのフィルム基材の厚さが $150\mu\text{m}$ 位有るので安定性が良く、筆者らは専らこのフィルムを用いた。

2-11 X線顕微鏡の問題点と将来展望

Cosslett, Nixon 達の報告(1957)の中にすでにX線像が暗く、露出時間に数分を要し、問題は電子レンズの収差にあるとの指摘が見出せる。ピント合せの工夫はいくつあったが、肉眼でピントが合せている事が装置の普及を妨げて来た主な原因と思われる。又、X線顕微鏡の優れた特徴が失われたのではなくて、その個々の特徴に代替する手段があること(例えば走査型電子顕微鏡, X線マイクロプロトタイプ, 微小X線装置, 等)がX線顕微鏡に対する江湖の期待の肩代りをして見えている。試作後15年以上経過した現在でも電子レンズの収差の問題は進歩していない。しかしその他の関連技術は大変進歩した様に見える。写真材料によるX線検出の非効率さは、高効率なX線カウンタと光電変換装置であるTV用のイメージオルシコンなどの活用で途が展がれつつある。(Kozaki et al. 1972) X線カウンタを用いた走査型X線顕微鏡 Fig.1-1(4)などはその後電子線励起X線マイクロプロトタイプとして広汎に利用されている。又、透過X線を多数のX線カウンタで受光して、電子計算機と組合せて結像するX線CT, (Fig.1-1(5))などの発展もめざましい(Jeavons et al 1980)。写真フィルムに代る高効率な2次元X線カウンタの開発もめざましいものがあり、ユークなものもいろいろある(Stair 1980, Stümpel et al 1993)。これらの技術は殆どが1956年のシンポジウム後に発展してきたものと言える。すでに本書式紙の中でも電子銃と真空の基礎技術は解決されたと言える。従ってレンズの収差の問題が解決され、開口の大きい電子加速系(電子レンズ台には限りに)が出現すれば、投射型X線顕微鏡は、もう一度顕微鏡学に希望の灯をともすことが出来るであろう。

2-12 結 言

Cosslett-Nixon型の投射型X線顕微鏡の試作を行い、その重要な技術的ポイントに対して向題集の解決法を明らかにした。それらを箇条書きにまとめるべ次の本集になる。

- 1) 電子金充： タングステンヘビウムフィラメントの電子金充光輝度 $\sim 1 \times 10^5$ (A/cm/str), 分解能 $1 \mu\text{m}$ 以下の用途にはこの光輝度では明度が不足する。電界放射型電子金充は単結晶ポイントカソードを使用し、 $10^{-7} \sim 10^{-8}$ Torrの真空度で $100 \mu\text{A}$ 以上の安定な放射電流を得た。この電子金充を用いるには束口角の大きい電子加速系が必要。
- 2) 電子光学系： レンズ束口径 4mm , 球面収差 $C_s = 2.5 \text{mm}$ のホールビースを持つ2段縮少形電子光学系を用い、 $0.3 \mu\text{m}$ 中のX線焦点を作ることに成功した。2段電子レンズ方式の設計の目安を論じ、レンズ系操作時に現われる問題を論じた。2段電子レンズ系の軸合せの問題を論じ、電子線軸合せ装置を試作した。
- 3) 電源装置： 高圧電源 $5 \text{KV} \sim 40 \text{KV}$ の出力に対し、安定度 3×10^{-4} , レンズ用カソード電源装置 $0 \sim 200 \text{mA}$ に対し安定度 1.6×10^{-4} を達した。負帰還電源系設計の一般理論を示した。
- 4) X線光学系： 試料及び写真フィルムの安定性を論じ、高分解能X線カメラ系の考案を示し、実用的X線顕微鏡カメラを試作した。
- 5) X線源サイズの向題： X線源サイズについての従来の議論を紹介し、実験法について論じた。
- 6) X線像量拡大像： 投影像の具体例を示し、立体観効果が出来ることを示した。フレネル干渉縞の存在を示し、その対策として電子計算機を用いた像再構成の可能性を指摘した。
- 7) 顕微鏡試料の扱い： 試料サイズには適当な値があることを論じ、目安を図で示した。
- 8) 感光材料： 投影拡大写真用としては電子顕微鏡用フィルム F4 が最適であることを論じた。写真に代る光電変換技術の発展にも触れた。

第3章 ^{発散}白色X線を用いた回折顕微法による結晶の観察

3-1 緒言

1912年にラウエ等が硫化銅結晶のX線回折写真の撮影に成功して以来、ラウエの回折図形は結晶方位の決定の有力な方法となり、現在も広く用いられている。ラウエの回折図形の撮影には、白色X線の細い平行ビームを1つのX線紋りで形成し試料結晶に照射して、散乱されたX線を写真乾板上に記録すれば良い。一方、点状のX線源から発散する白色X線を用いて、Fujiwara et al. (1941), Guinier et al. (1949), Schulz (1954) 等は結晶性物質の内部構造を撮影した。その像の中には不純物及び結晶欠陥の存在が認められた。以来、発散白色X線法は結晶の検査と観察の方法として認められるようになったが、回折像の解釈法が確立していない。本回折顕微法は他の平行X線ビームにない特徴の数々を持っている。その一つは回折像分解能が、第二章で論じた陰影拡大像と同じくX線源のひろがり一度に多数の反射面像が撮影出来に依存している。又回折像がX線光学的に拡大される事である。本章では前章で論じた微小X線源を用いた高分解能拡大ラウエ法によって撮影した回折写真のコントラストを解釈する方法を具体的に示し、その実用性の解明に努めた。

3-2 拡大ラウエ法 (以後MLD法と略記する: Magnified Laue Diffraction) の光学系

3-2-(1) X線源

白色X線を発生させる方法は通常次の三通りである。

1). 通常のX線管とピンホールコリメータの組合せによる発散X線

この場合X線管の陽極には比較的広い面積に電流が当たっている。

2). 微小焦点X線源

金属薄膜ターゲットが用いられる場合は、ターゲット自身がX線取出窓とX線強度を変えるフィルターの役割をする。通常のバルクの金属ターゲットが用いられる場合にはX線取出窓はBeなどの低X線吸収の材料を用いて別に言及される。

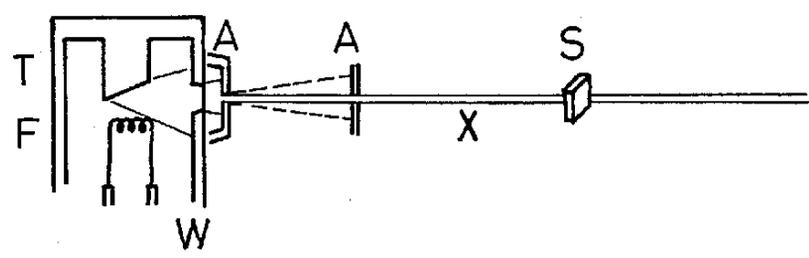
3). SOR (同期的軌道放射)

放射されるX線は多分平行なX線束で、発散していないから、拡大ラウエ写真を撮る目的には用いられないが、平行な白色X線束であるので、ビーム線束に入る試料に対しては回折顕微鏡像を得ることが出来る。又、収束ミラーを用いて発散X線の場合はMLD法にも用いられる。

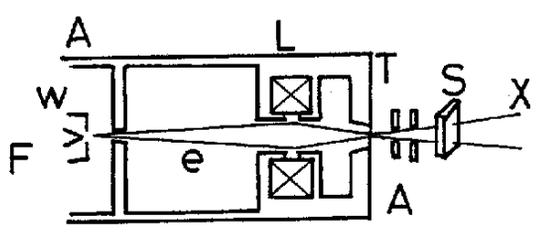
Fig. 3-1は上記三つの方法を図解している。①の方法では、タングステンとか金のごとき白色X線発生効率の高い重元素が陽極材料として選ばれる。ピンホールコリメーターとしてはX線吸収率の高い物質、例えは金、鉛のごとき物質が用いられる。X線管のX線出力が印加した電力の1%以下の低い発生効率であることは良く知られている。したがってX線出力を高めるためには、許容し得る最大の電流密度まで電流をターゲットに印加せねばならない。(ターゲットは電気的な電極の一部を指し、電子の衝突の標的の意を持つが、X線管では陽極とターゲットを同義語として用いる。又陽極まわりのいろいろな部分を含めて“ターゲット”と称することもある、ここでは物理的な意味で電流と電極原子の相互作用の生じている部分に限って陽極とターゲットを同義語として扱う)

電流密度の上限はターゲットの表面温度、就く電子衝撃の中心の温度と陽極物質の融点で決まる。従って陽極は通常背面から流水で冷却される。1)と2)の形式のX線源を比較した場合1)の方法の冷却効率は2)の方法より低い。2)の場合は熱源から3次元的な熱の伝導による放散が在るからである。従ってターゲットの単位体積中のX線発生効率は2)の方法が優れている。MLD法では分解能を重視するので光輝度の高いX線源が適して

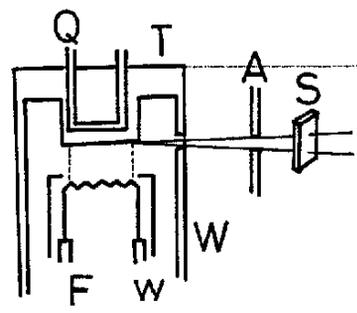
1)



2-1)



2-2)



3)

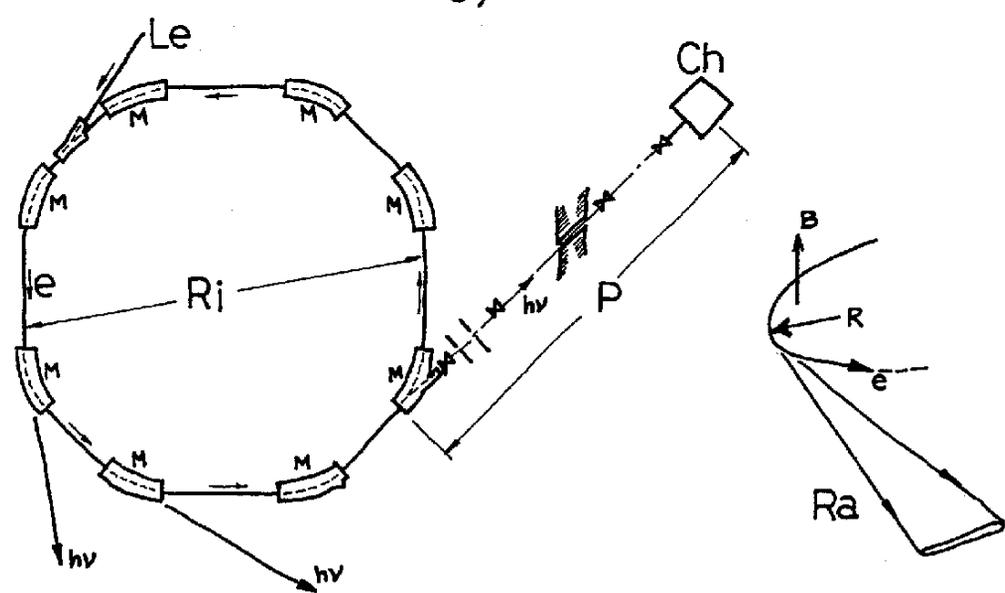


Fig.3-1 Conventional X-Ray Sources

- 1) large area x-ray source; (T) target, (F) filament, (A) x-ray aperture, (W) x-ray window, (X) x-ray beam, (S) specimen crystal.
- 2-1) point focus point source; (A) anode, (W) Wehnelt cylinder, (L) electron lens, (e) electron beam, (T) target.
- 2-2) line focus point source; (Q) quenching water, (w) Wehnelt, (W) x-ray window, (T) target assembly.
- 3) SOR synchronized orbital radiation
 Le: linear accelerator for incident electron, Ri: storage ring of electron beam, M: deflecting magnet, P: working port, Ch: working channel, Ra: radiated x-ray, e: orbital electron, B: magnetic field.

おり、2)の型のX線源であるマイクロフォーカスのX線発生装置が一般に用いられている。一般に用いられているマイクロフォーカスのX線発生装置の線源サイズは $\sim 10\mu m$ で、 $\sigma = \sigma_c$ で筆者らが試作したX線顕微鏡の場合に比べ、一行以上大きく、撮景される回折像分解能は低下するが、ターゲットに印加する電流量を増加してX線強度を高め露光時間の減少を計ることは出来る。

2)の方法のごとき点状X線源は電子線収束系とターゲット部分から成立している。青銅電又は、 $\sigma = \sigma_c$ で記したごとき電石レンズを用いて、点状又は線状の焦点をターゲット上に形成し、そこから発散X線を発生させる。電子レンズを用いた点状X線源の場合ターゲットに流入する電流はCosslettの計算によると、

$$I_t = \frac{4\pi p_c r^{\frac{3}{2}}}{(2C_s)^{\frac{3}{2}}} \frac{V_1}{V_c} \quad \text{---- (3-1)}$$

ここで p_c はフィラメント上の電流密度、 r はターゲットでの焦点半径、 V_1 は電子線加速電圧。

C_s はレンズの球面収差係数、 V_c はフィラメントに電子が加速する時の平均ポテンシャルエネルギー $\cong 0.25V$

一方、ターゲット物質の融点から導かれる、ターゲット表面での電力損失の最大値は、 $\frac{E_{max}}{t}$ ターゲットの厚みが

電子の拡散距離より充分に厚い時には次式で与えられる(Cosslett & Nixon 1960),

$$E_{max} = 2\pi r k (T_{melt} - T_R), \quad \text{---- (3-2)}$$

ここで k はターゲット金属の熱伝導係数で、銅ターゲットの場合 $k = 3.9 W/cm/^\circ C$, T_{melt} は融点、

T_R はターゲットの冷却側の温度などである。ターゲットが溶融しない条件は(3-1)式と(3-2)式

から求まる。ヘビオンフィラメントが供給し得る電力 E_t は加速電圧 V_1 の場合 $E_t = I_t \cdot V_1$ なので、

$$I_t \cdot V_1 < 2\pi r k (T_{melt} - T_R) \quad \text{---- (3-3)}$$

Long (1959)によれば $p_c = 1 A/cm^2$ の通常のヘビオン使用条件で、 $r \cong 1\mu m$ 以下では(3-3)式

が常に成立する結果が得られている。銅ターゲットで焦点半径 $1\mu m$ の場合(3-2)式によれば、

$T_{melt} = 800^\circ C$, $T_R = 100^\circ C$ を用いて $E_{max} \cong 1.7 watt$ となり、40KVでは約40 μA 程度が

計算上の限界値を与える、タンクステンターゲットでは40KV, 100 μ A程度となる。しかし通常のハビオンフィラメント使用の電子銃では焦点直径 $\sim 2\mu\text{m}$ の場合せいぜい10 \sim 20 μ Aが第二章で試作した装置の限界であった。高輝度の電子銃が望まれる理由^由に在る。この電子銃の輝度不足を補う方法は、線状焦点を用いる方法である。焦点の長手方向から低角度($\approx 1^\circ$)で焦点を見込むと概似的に点状X線が得られる。線状焦点の場合のターゲットの冷却効率^率は点状と面状の間程度になるが、全X線強度は点状X線源の場合より大きくなるので分解能を問題にしない使用目的には概似的X線源も使用出来る。MLDの場合には、やはり第二章の如き点状X線が適している。最近、上述のSORが実用化された(Kohra 1983)。この方法によると通常のX線管に比べ $\sim 10^3$ 倍位の強いX線束が得られ、回折像の撮景も ~ 10 秒の単位で得られる。しかしX線束は殆んど平行なのでX線光学的な像の拡大は伴わないから、像の分解能は写真フィルムにたよるを得ない。Bragg反射を利用した湾曲ミラー(Berremann 1955)などを用いて像拡大、あるいは発散X線としての利用も考えられる。又この方法は単一偏光成分のX線なので、新たな研究分野の展開が期待される。

3-2-(2) X線光学系

MLD像を撮影するための実験的な装置は、X線絞りと試料並びに記録用の写真乾板(又はFilm)から成り立つ、Fig. 3-2

a) 陰影像

これは第二章で論じた透過拡大像であるが、MLD像に伴って撮られる場合の特徴を記す。この像は電子顕微鏡における明視野に対応するもので、試料中の物質のX線吸収量の差がコントラストとして表われる。一般にMLD法は結晶試料の観察に用いられるの

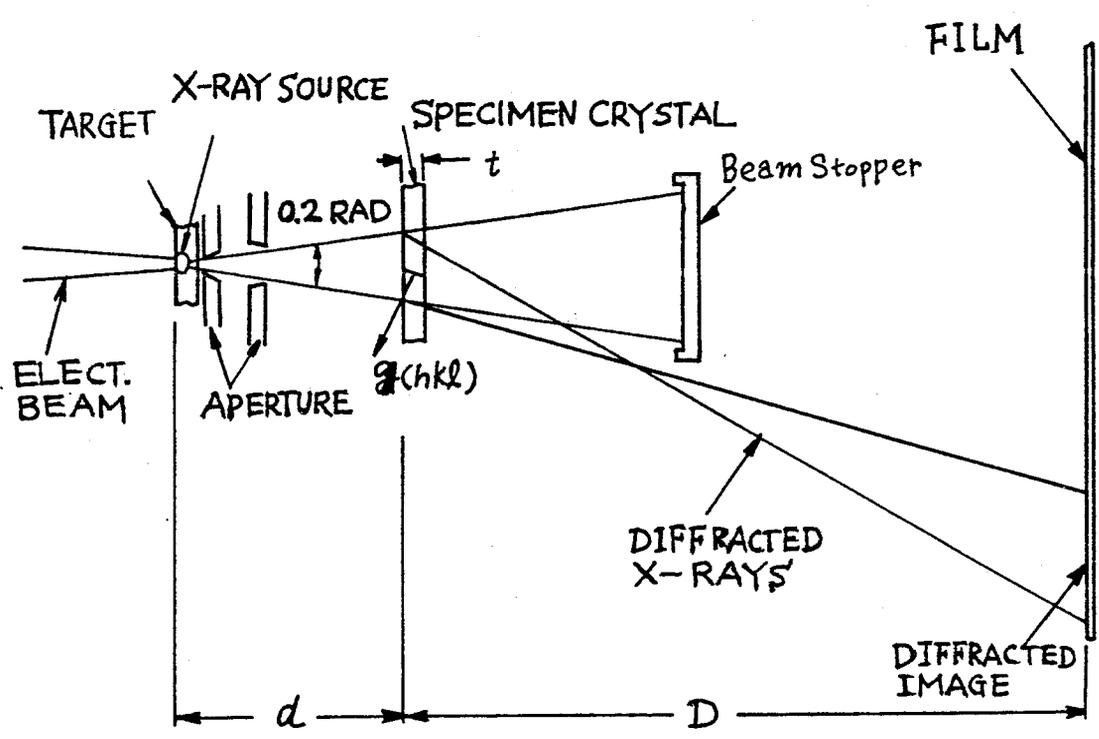


Fig. 3-2 MLD像の光学系原理図

で単一物質では発散X線束中に入った結晶の立体形状と言式料内に分散している異物のコントラストが現れると共に、単結晶性が良好な場合照射X線中の特性X線による擬コッセル図形が観察される(Kossel 1935, Lonsdale 1946, Umeno et al. 1966)。一般に同時観察する回折像と透過像のX線強度比は $1:10^3 \sim 10^4$ の割合である。すなわち殆どどのX線光子は言式料中で相互作用することなく透過してしまう。そこで回折像を出るだけ短時間に撮る目的で、分解能の比較的劣る高感度フィルムを用い、かつX線源サイズを数 μm 位にして撮影する。従って分解能を高めるためには線源サイズを小さくして高分解能フィルムで撮りなおす必要がある。或はフィルムより高感度なTV式(Kozaki et al. 1972)が用いられる場合には、高分解能拡大像を直視出来るが、光電変換装置の分解能は現在 $\sim 20\mu\text{m}$ 位で、Filmより一桁落ちるので、X線光学系による拡大を活用しないと良好な画質は得られない事、及び光電面サイズが $25\text{mm}^2 \sim 50\text{mm}^2$ 程度で Filmに比べて観察範囲が限られるなどの問題もある。又使用コストも無視出来ない。従って、上述のごとく現状ではMLD像と同時観察の透過像には分解能は期待出来ない。

言式料を透過したX線は

経路の空気とか、フィルム、及びカセット背面に衝突して二次X線、二次電子などを生じ、これ等が写真のかぶりを生じるので、Fig. 3-2に見られる透過X線ストッパーを使用し、無用のバックグラウンドを除く。

b) 拡大ラウエ像 (MLD像)

結晶像の原理は、結晶周囲面による白色X線のBragg反射であるので、MLD像は電子顕微鏡金鏡の場合の暗視野像に対応している。多数の面指数の異なる反射面の像が同時に得られるが、立体構造の情報はこれらの全ての反射に分散しているので、これらの全情報を合成することにより高分解能な立体構造を描くことが可能となる。この特徴は、従来単結晶の観察に多用

されているLang法(Lang 1959)とか、SOR以外の光源による平行ビーム法(高良・菊田, 1967)には見られない。従って、一枚のMLD写真から結晶の転位の分布、不純物原子の周辺の歪の分布、或は波動力学的コントラストが観察出来る。MLD対象と結晶内部との対応は複雑なものであるので、第四章で改めて論ずるが、要約すると撮影条件によって像の形は変化するが試料内の臭と像の上の臭は一対一の対応は付け得る。撮影の条件は、上述のように回折X線の強度が弱いので、工業用のX線写真フィルムが用いられた場合、例えばX線源とフィルムの距離を数cmとし試料の厚さを、 $1/\mu$ 位にして、40kV・10 μ A程度のX線条件で3~5時間位の露出時間が現状の目安になっている。

c) X線用感光材料について

回折像の撮影には、上述のごとく工業用写真フィルムが常用されるが、このフィルムの大口の用途は溶接構造材の内部欠陥の透視検査などであるため、撮影対象物が比較的大きいので分解能を犠牲にして感度を高めている。従って感光銀粒子の粒度が粗く、通常1~数 μ mである。又乳剤膜の厚さも~30 μ mあるので斜めに入射するMLD像(Fig.3-2)の場合、臭状の像が線状に記録されてしまうことがある。この問題は乳剤膜厚が50~100 μ m位の原子核乾板などの場合も同様である。工業用フィルムは、フィルムシートの両面に感光乳剤膜があるので、必要に応じて片面のみ現象処理を行う。筆者らが主に使用したフィルムはSAKURA N, RR, Rなどであるが、国内、国外各社からいろいろな商品が市販されている(Morimoto & Uyeda 1963) $\text{CuK}\alpha$ 線に対する感度比は N:RR:R = 2.6:0.3:0.16 のデータがある。又粒状性については N:RR:R の順に並べると 3.5 μ , 1.1 μ , 0.8 μ である。分解能と感度を同時に高めようすると現状では原子核乾板のごとくに感光乳剤膜の厚さを増かせねばならぬが、現象は低温処理(0 $^{\circ}$ Cで1時間位で徐々に現象する)などで“カブリ”を防ぐなどの処理を要する。

これらの事実から、通常使用される感光銀粒子よりも更に量子吸收効率が高い感光素材への期待が高まり、分解能の向上と撮影時間短縮が望まれている。写真材料は微粒子サイズにおける光電現象と云えるが、機械的サイズ ($\sim 10\mu\text{m}$) の光電変換はすでに現代の電子光学的変換素子で実現されている。(4川, 1974, Kozaki et al 1972) 機械的サイズは半導体工業の発展に伴って、微粒子サイズに近づく状態にある。X線に対する感度は工業用X線フィルムに対して 10^3 倍位高く (Kozaki 1972) 0.4秒位の露光で通常のMLD像が通常のX線条件下で撮れている。従って、現状ではMLD像全体を一度に、十分な分解能で光電変換する装置は無いが、秒単位の時間でMLD像を撮影する技術的な問題は殆んど解決された様に見える。

3-3 酸化モリブデン結晶の観察

酸化モリブデン (MoO_3) は透明な結晶で、電子線に対しても透過性を持っているので、従来多数の研究が成されていた。(König 1951, Hashimoto 1954, Bursill 1961, Yoda 1960) KönigとHashimoto達は電子顕微鏡の中で MoO_3 が MoO_2 に還元される過程を観察し、羽根状模様形成を論じた。同様な方法でBursillは高次のコントラストを観察し、その成因を論じ、電子線照射による衝撃によって、 MoO_3 から酸素がもぎ取られる結果生ずるすべり面周辺における歪場であると説明している。Yodaは 700°C の雰囲気中で気相成長する MoO_3 結晶を光学顕微鏡でその場観察を行い、多くの酸化物の液滴を結晶の成長過程で見出していた。HashimotoとUrai達はこの成長過程で現われる液滴中の酸素含有量の研究を行い、液滴が室温に冷却される際に MoO_3 に近い格子定数の結晶が非晶質になる現象を見出した。この特徴的な結晶を、MLD法で観察した場合に生じる現象を解釈する中でMLD法の応用性を展開することが本観察の一目的であった。

3-3-(1) 西酸化トリブテン試料の製作と観察方法

実験に用いた西酸化トリブテン結晶は Ammonium Molybdate の熱分解又は純西酸化トリブテン粉末の加熱分解などの手法で昇華させた気相からの結晶成長法で作ったものを用いた。電気炉による方法 (Yoda 1960) も試みたが、Fig. 3-3 に示す簡単な方法でも結晶化する。結晶の成長条件を厳密に追及する目的には前者が適っているが、当面の目的に対しては後者の方法で充分目的を達した。

市販されている試薬一級品の MoO_3 粉末を蓋付のルツボに入れて、図に見られるごとくバーナーで $600 \sim 700^\circ\text{C}$ (熱電対にて測温) にして $1 \sim 2$ 時間加熱する。この熱処理が終了すると多数の針状、板状の長さ数 mm 乃至 2 cm 位の透明な結晶がルツボ上部にはり付く様に見える様子が見られた。実験用に用いた試料は、厚み $20 \mu\text{m}$ 位のものを選んで取り出した Fig. 3-4。取り出した試料は外径 6 mm、内径 3 mm の真鍮製座金の上へのセ、ワックスの小片を加熱溶解して試料の両はじを軽く固定し、飛ばされなればよい。ワックス小片を座金上の結晶のわきに載せ、小型の電気炉にて座金を軽くさわれば容易に固定出来る。

X線顕微鏡観察の撮影条件は次のごとくであった。電子線加速電圧 40KV, X線ターゲット流入電流 $10 \mu\text{A}$, 全電子電流 $200 \mu\text{A}$ 。X線ターゲットは $20 \mu\text{m}$ 厚のアリミニウム箔に金を約 $1 \mu\text{m}$ の厚さに蒸着させたものを用いた。X線源サイズは測定していないが、X線像を蛍光面上で観察しピント合せを行った結果から $5 \mu\text{m}$ 以下であろうと推定された。 $10 \mu\text{m}$ の厚みの銅ターゲットを用いた場合の例では、40KV, $10 \mu\text{A}$ の条件でターゲットX線像を撮影し、像のぼけ具合からX線源サイズは $\sim 10 \mu\text{m}$ であった。これらの事実から一連の観察は Al-Au の箔ターゲットを用いたが、X線源の大きさは露出中の変動などを考えれば $\sim 10 \mu\text{m}$ になっていた可能性が有り、従って分解能は $10 \mu\text{m}$ と云えよう。

X線光学系の寸法は、X線源—試料間距離は約 1 cm, X線源—Film間距離は約

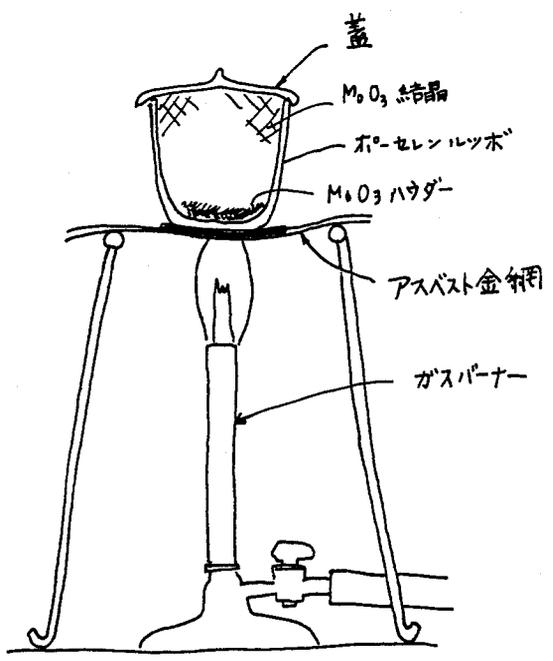
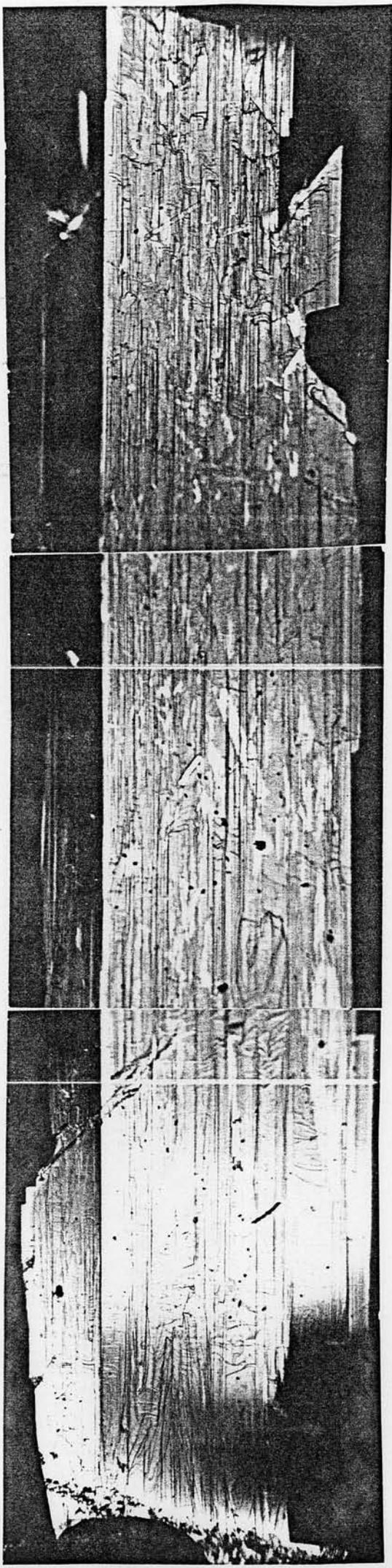


Fig. 3-3. 加熱分解昇華法にお結晶成長法.



1 mm

Fig. 3-4 異常コラーゼの見出し
 M_oO_3 結晶 $\times 46$
 赤く見るのは照明のためあり
 肉眼観察では透明に近い。

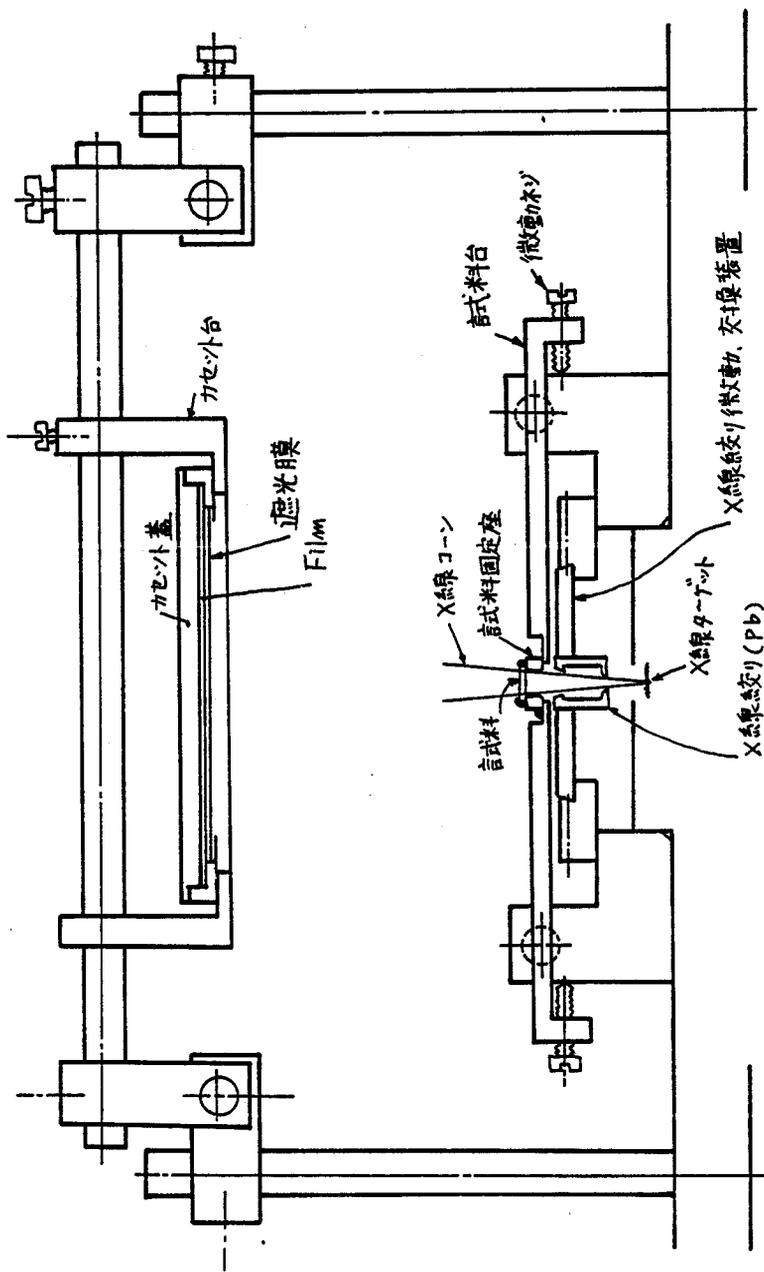


Fig. 3-5 MLD 像撮影用試料台とカセット台

5cm, Fig. 3-5 に示すとき式料台に固定した。 使用したX線FilmはSAKURA NとRRである。

前述の如くN型はRR型に比べて約10倍の感度を有するが、分解能が悪いため予備的な撮影に用いた。

結晶方位、撮影位置の設定及びミラー指数決定の目的にはN型で充分であった。 回折像撮影

には専らRR型を用いた。 露出時間はN型の場合約20分、RRの場合約3時間を要した。

写真フィルム¹の現像は工業用Xフィルムで両面乳剤型であるので、X線入射側のみ片面現像

を行った。 フィルムの背面に予めビニルテープ(電気絶縁線用の、巾2cm位のもの)を張り付けてお

て現像を行った。 現像液はSAKURA コードル 指定の如きで行った。 現像後テープをはがして

定着処理を行い、不要の銀粒子を取除く。 テープの向き向から現像液がしみ込む率があり、不要の

バックグラウンドが現像されることもあるが、これはハイポと赤血塩を用いた減液で取除いた。

中位のテープを張りつけた方法を試みた場合、テープの厚さが厚くなり、フィルムがそり返って扱

写真撮影後の

ミラー指数付けには、金属製球形結晶儀が有効に使用された。

3-3-(2) 観察結果

Fig. 3-6 は MoO_3 のMLD像の一例である。 右上の(b)図は対応部分の光学顕微鏡像である。 中の大きい円で示された部分をMLD法で撮ったものが(a)図であり、陰影透過拡大像が(c)図である。(c)図の円形の窓はX線紋りの影である。(a)図はFilmを一度反転焼付けているので、コントラストは最初の陰画と同じである。この場合ビームストッパー(Fig 3-2 参)は用いてない。 中の矢印は結晶上の対応する一部分を指している、小さい至のX線紋りを用いて二重露出すれば得られる。 こうして位置の対応関係を明示することが出来る。(c)図中の横に走る一本の白い線は、結晶が壁状

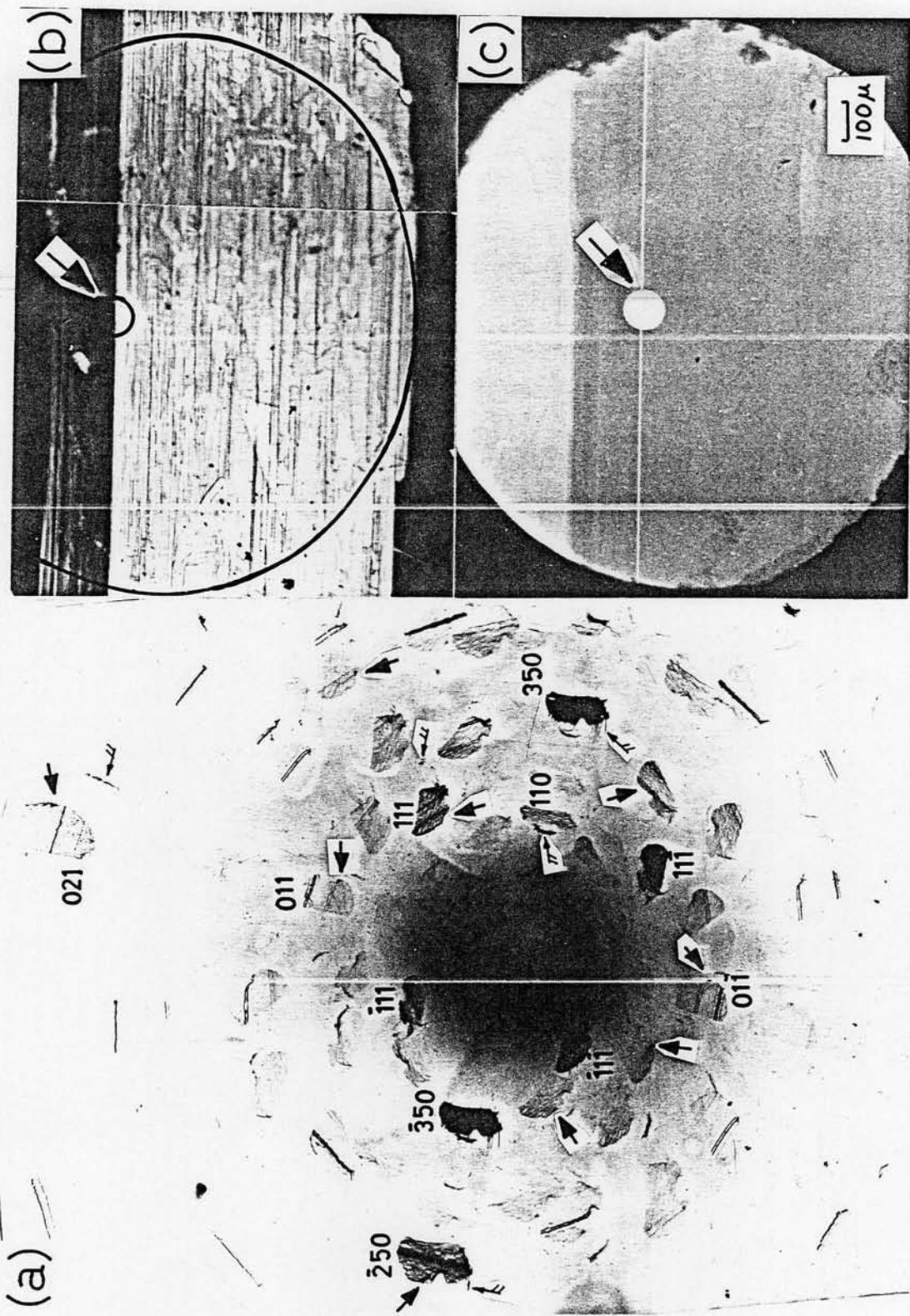


Fig.3-6 (a) MLD images of the MoO₃ crystal A. (b) optical image of the MoO₃ crystal A. Large circle shows the corresponding area to (c). (c) shadow X-Ray image. Arrows(→) in (a),(b) and (c) show corresponding portions. Arrows(←) in (a) show images of small crystals on the mother crystal.

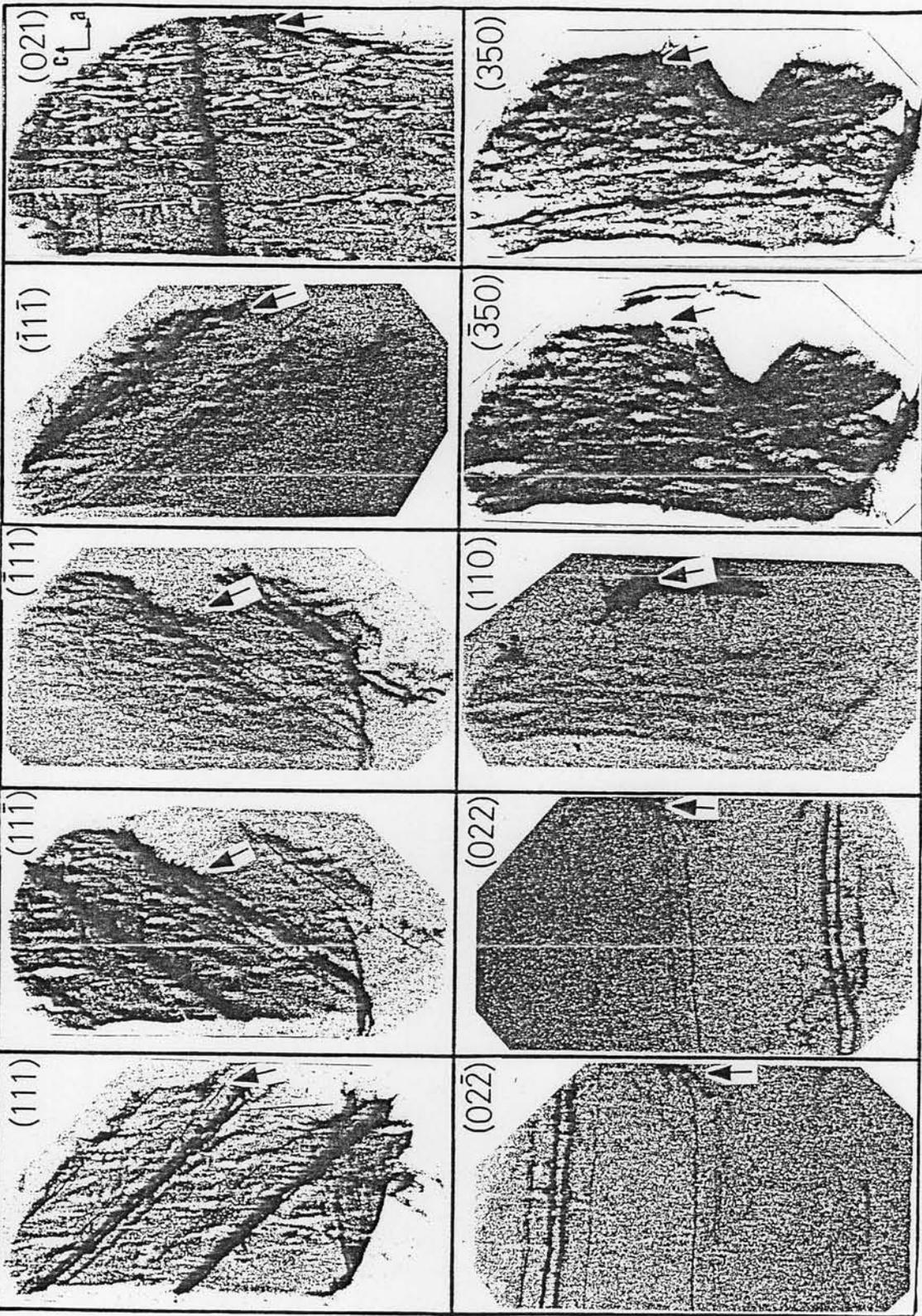


Fig.3-7 Enlargement and arrangement of MLD images shown in Fig.3-6(a) in same orientation.
 Arrow show the corresponding point on the crystal and the same points indicated in Fig.3-6.

している事を示している。(c)図の結晶部分の写真黒化度が一樣であるのは、観察の領域で結晶の厚みがほぼ一樣であることを示している。Fig. 3-6(a)中のMLD像のいくつかをFig. 3-7に並べかえて示す。結晶の方位は(021)面反射像のわきの矢印で示してある。各反射像には結晶のC軸を横切る金の L_{α} , L_{β} の強い線状のコントラストが見られる。そしてC軸方向に於て、撮影波長が連続的に変化している様子が見られる。特に(021)反射において特異なコントラストが現われている。Fig. 3-8に示す(021)反射は、Fig. 3-6と同じ試料のMLD像であるが、コントラストが明瞭に見られる。Fig. 3-6とは撮影視野が少し異なるのでパターンの理水方は異なる。C軸に於て結晶成長のステップに於て白いひも状のコントラストと、それを挟む様に黒いフリンジ状のコントラストが魚鱗状に見られる。同時に記録されている他の反射面コントラストの観察結果から、いろいろな歪状態が推察された。Fig. 3-9は、同じ昇華ポットで同時に製作した他の MoO_3 結晶の光学写真とX線透過拡大像を示している。光学像の中の中央部に一組の虫巣状ステップが見られる。この種のステップは、しばしば螺旋転位のまわりに成長することが知られている。この虫巣状ステップの周辺部分の透過像Fig. 3-9(b)の中に濃縮エッセル図形が見られる。濃縮エッセル図形は動力学的多重反射により生じるもので、結晶が完全結晶に近い場合に生じる事が知られている。従ってFig. 3-9(a)のごとくに外見は荒れた状態を示しているにもかかわらず、結晶の内部は完全結晶に近いことを暗示している。この結晶のMLD像をFig. 3-10に示す。この中撮影はCuターゲットで行った。Fig. 3-10(b)に示すMLD像中で、虫巣状ステップの中央に白いひも状コントラストに似たものが見られる。このコントラストは螺旋転位ではないかと思われたが、バーガスベクトルの存在を示す情報は見られなかった。Fig. 3-11とFig. 3-12は、上述の実験と同じ方法で作られた MoO_3 結晶の観察結果である。Fig. 3-11に光学写真とX線透過写真、並びに一つのMLD反射が示してある。MLD像全体はFig. 3-12に示してあるがこの試料の特徴は、転位の存在と、大きな結晶歪みの存在が見られることである。

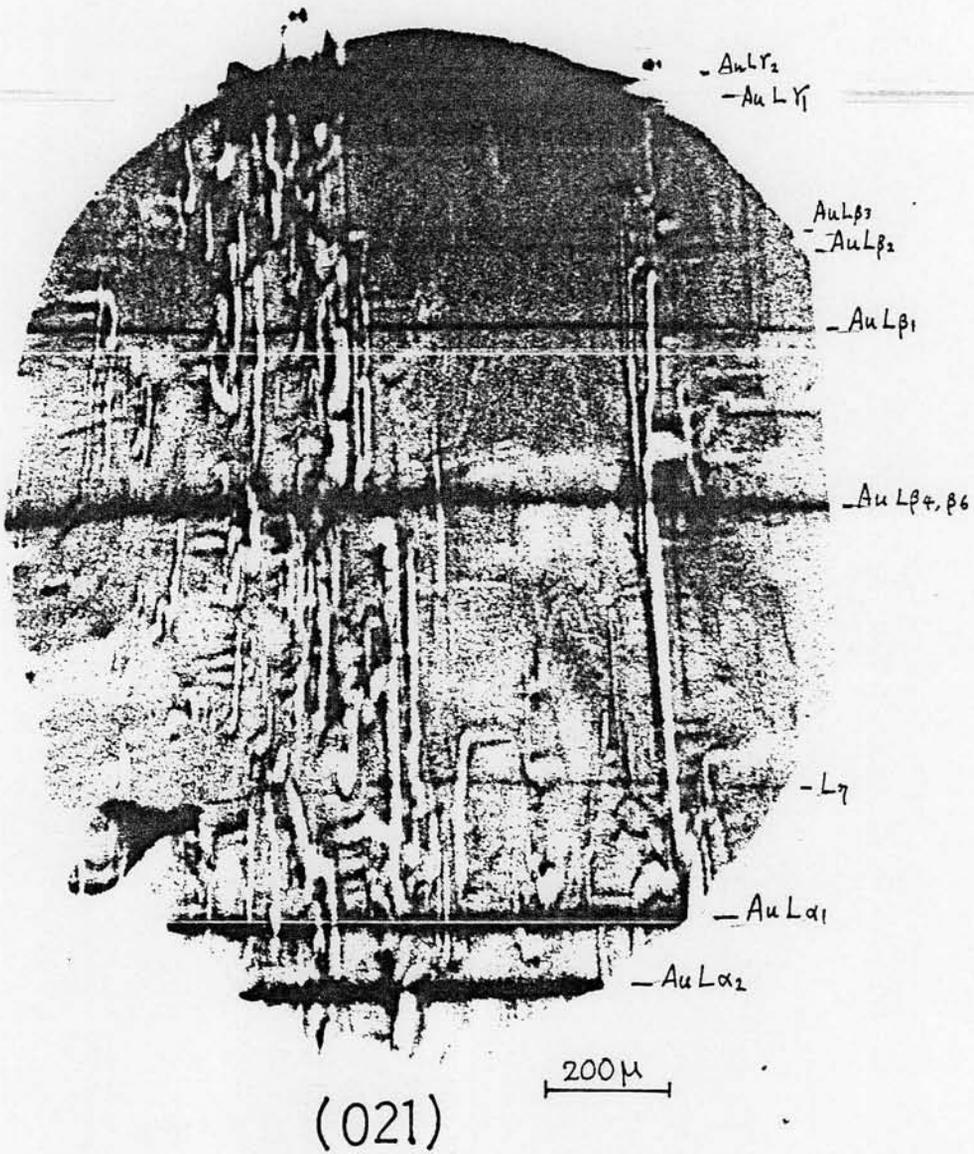
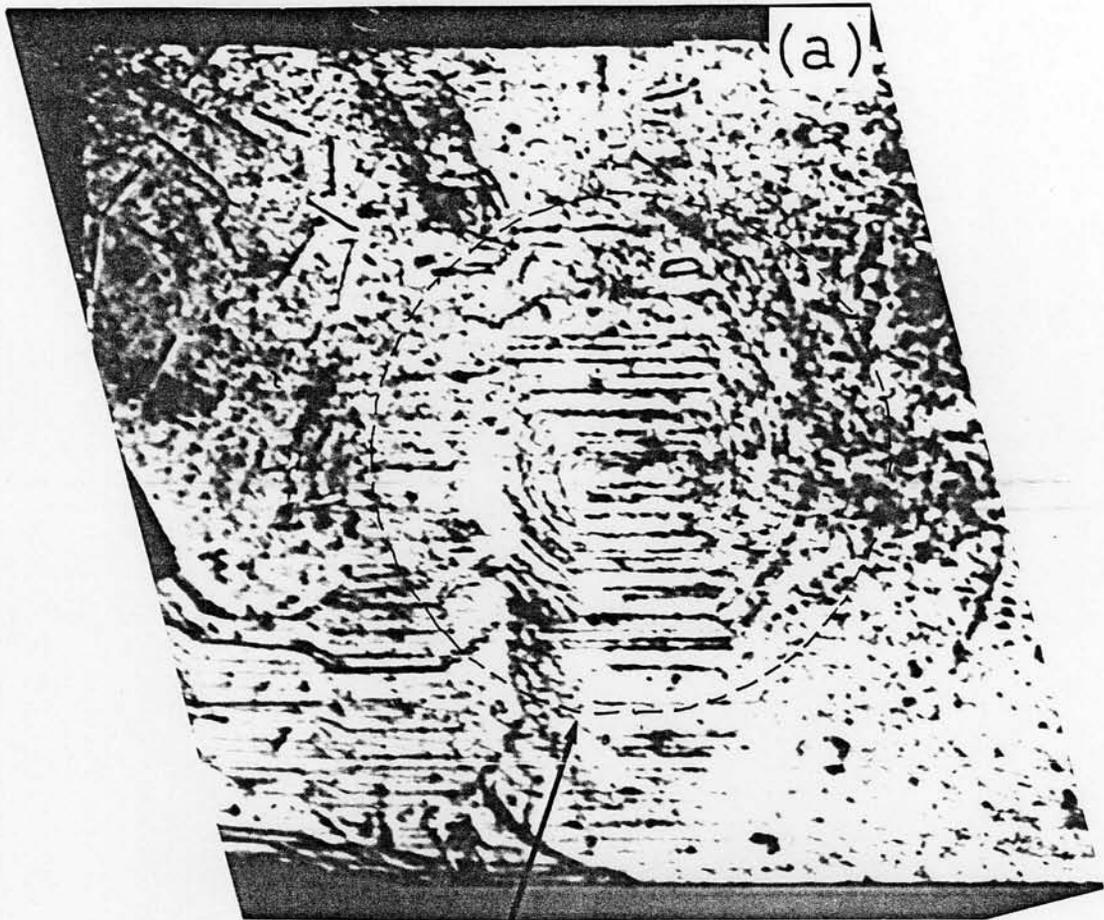
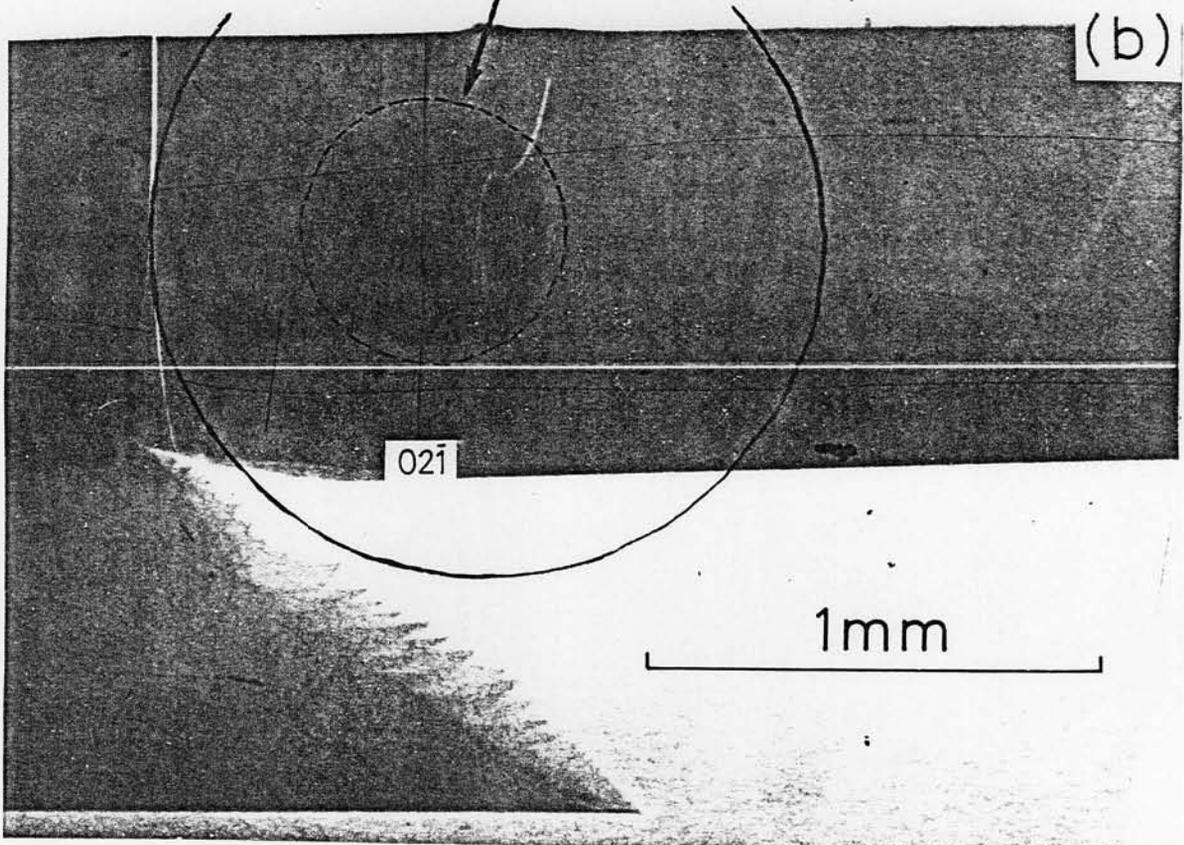


Fig. 3-8 MoO_3 MLD1像の異常コントラスト.

Optical image of MoO₃ (B)



(a)



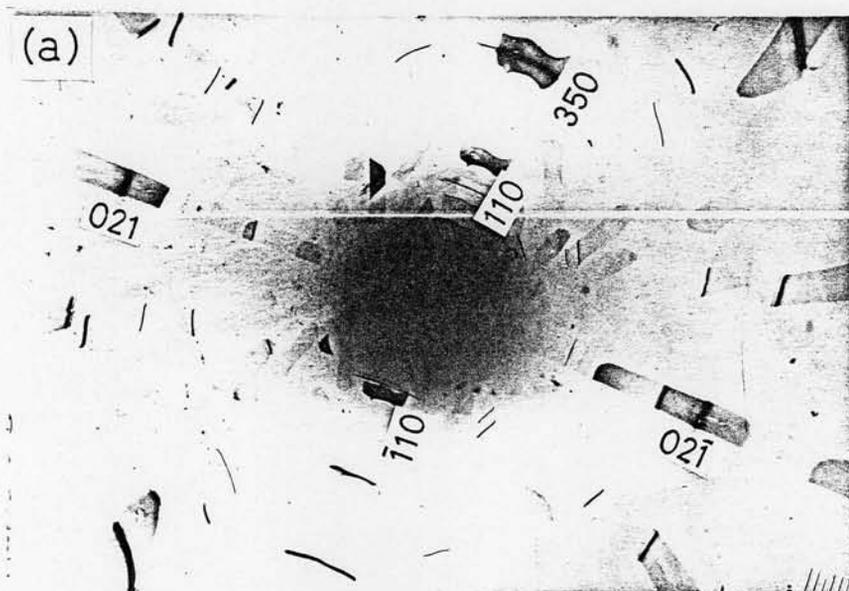
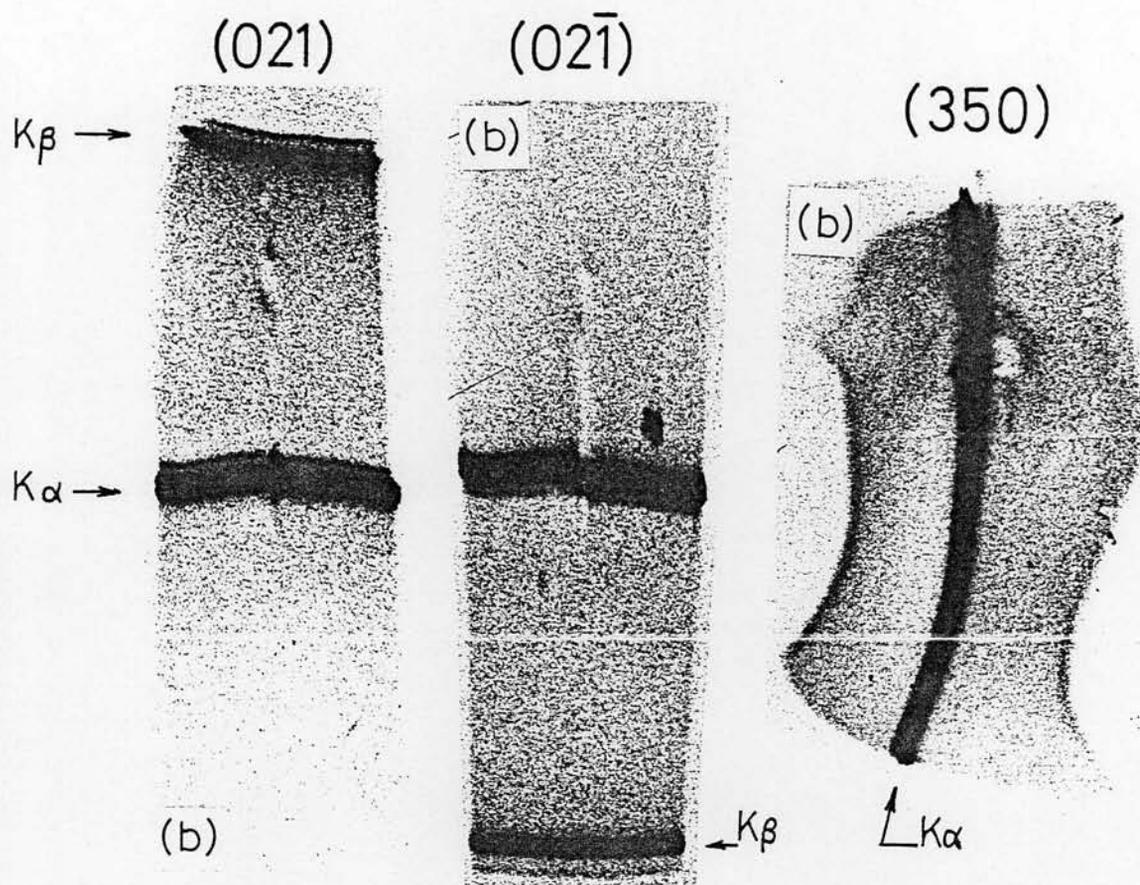
(b)

110
230
230
110

021

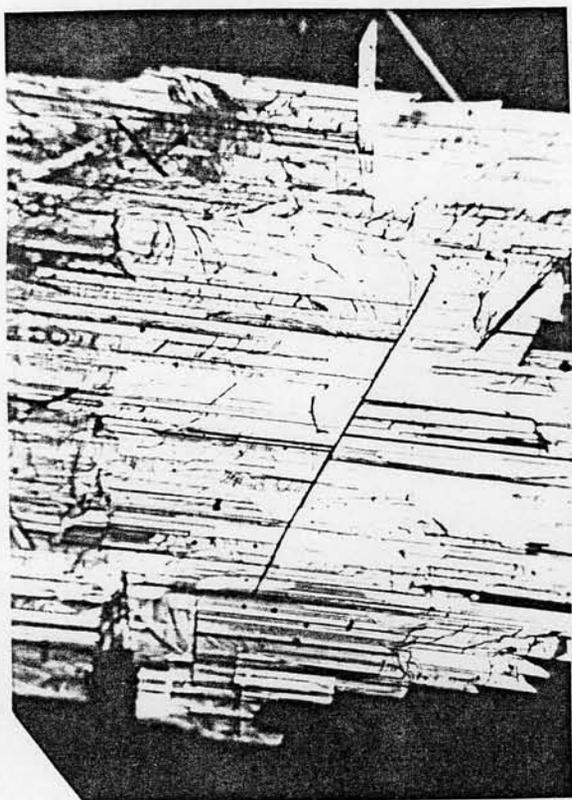
1mm

Fig.3-9 (a) optical image of the MoO₃ crystal B having screw steps on (010), (b) transmission X-Ray magnified image having Kossel pattern with small bending near center of the spiral growth. Dotted line circle shows the location of the screw steps. Line circle corresponds to the area from which the diffracted images in Fig.3-10 were obtained.

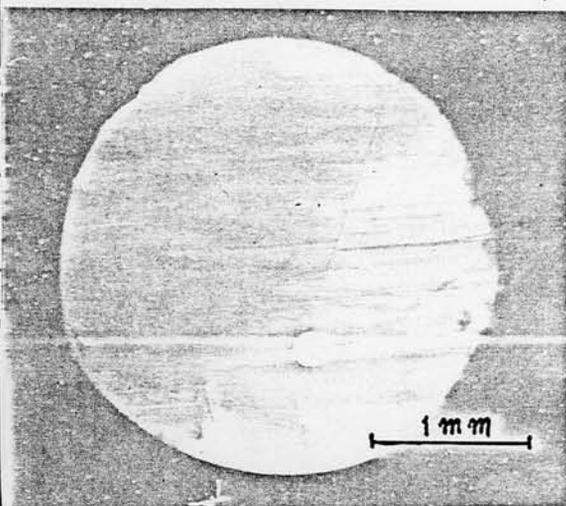


MoO₃(B)
40 KV 20μA (Cu target)

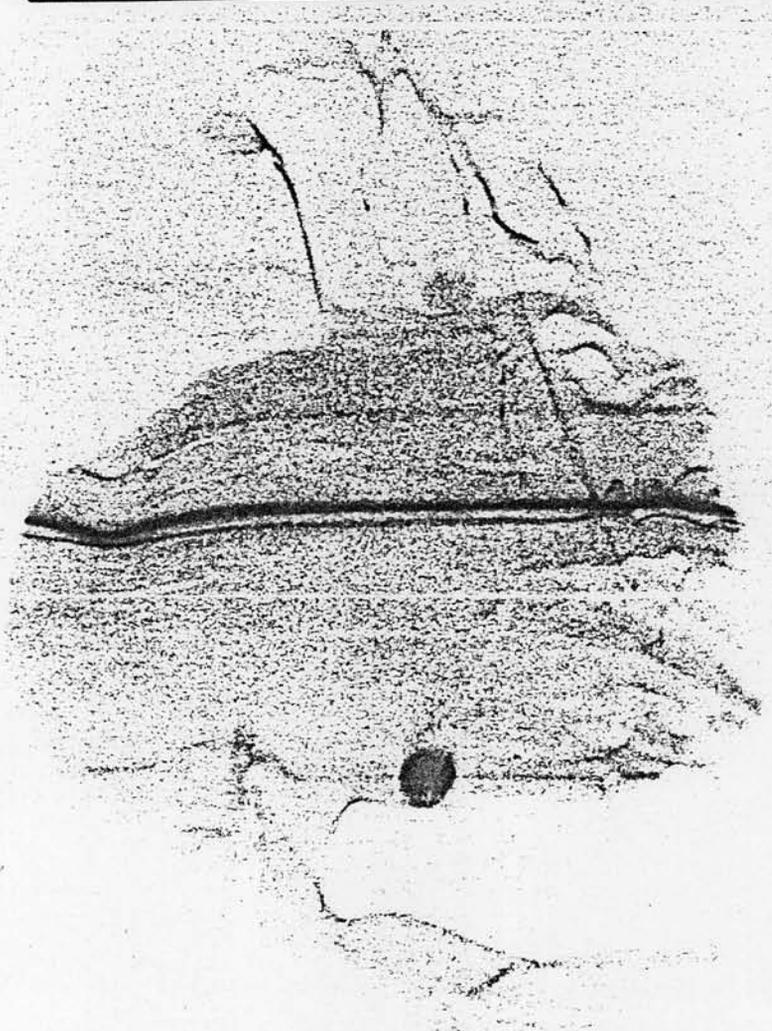
Fig.3-10 (a) MLD images of the MoO₃ crystal B.
(b) magnifications of some images in (a).



(1) 光学像 ×30



(2) X線透過像



(3) MLD像の一つ.

Fig. 3-11. 双状転位の有る MoO₃ 結晶

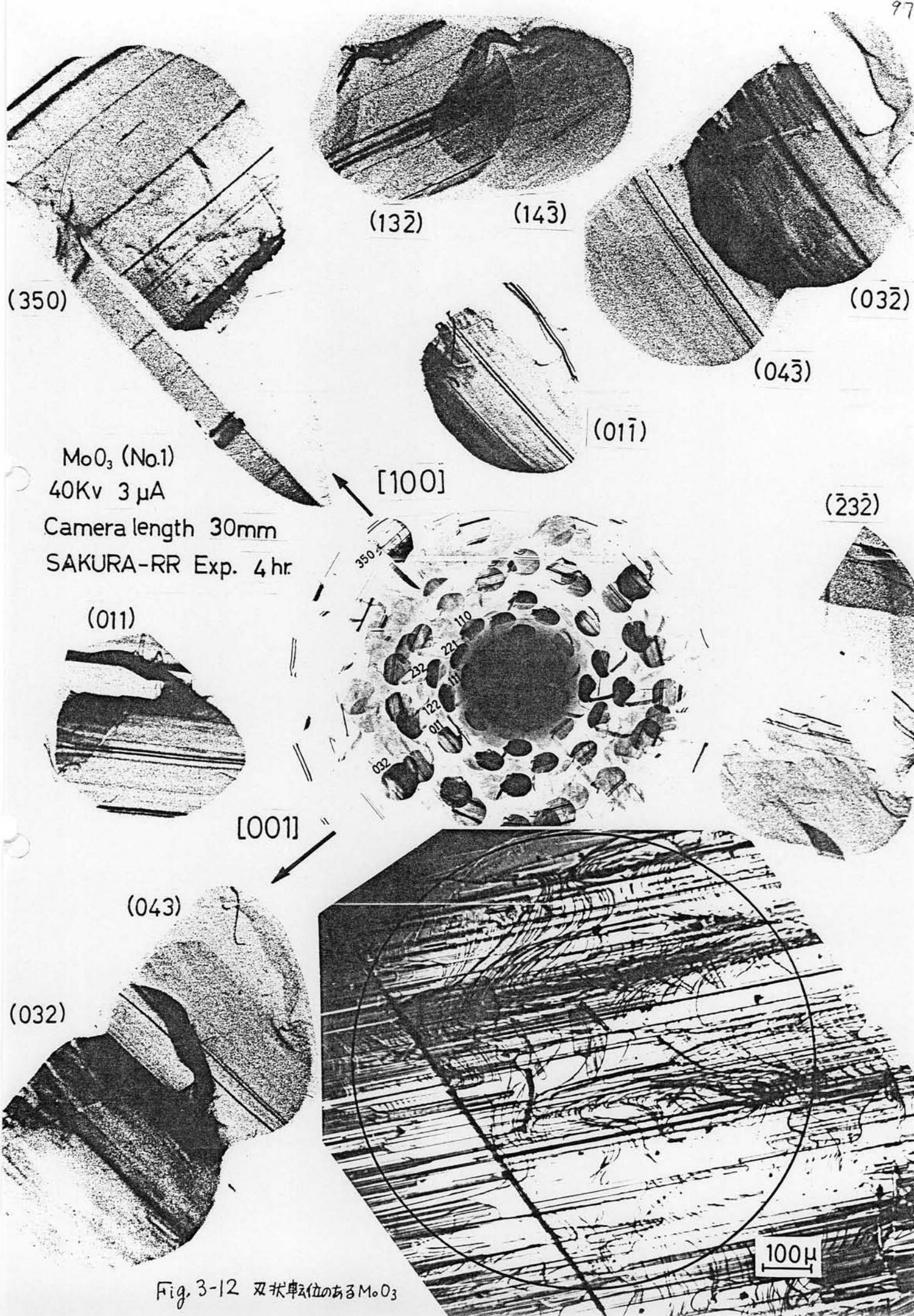


Fig. 3-12 双状単位のあるMoO₃

光学写真からC軸を横切る直線状にのびたステップが見られる、回折像の中には、対応する位置に黒いコントラストと白いコントラストの集まりが反射面によって異なって現われている。又ある面では白も黒もコントラストの無い面がある。

3-3-(3) 像解釈

Fig. 3-6 及び Fig. 3-8 に示した MoO_3 のMLD像の(021)面に特徴的に現われた白いひも状コントラストの起源に関して、次の二つの原因を予想することが出来た。第一は微小結晶の集合体、第二は空洞か非晶質成分が母結晶中に入っている事。微小な角度偏差のある小結晶体の集合体の場合には、白色X線の照射の下で回折像を撮ると、各結晶はわづかにずれた位置に反射像を生ずるため白い割れ目や像の重なりを生ずることがある。Fig. 3-6上の各反射を詳細に検討してみると、小さい回折斑点が臍々で見られるが、これは、その形と反射像の位置から判断して、母結晶とは大きく寸位の異った、母結晶上にくっついてる微小結晶であること。(Fig. 3-6(c)参照)。又各反射面の様子から、母結晶は一つきの単結晶であることが確かめられた。

若しも、白いひも状のコントラストの部分が非常に微小な結晶の集まりか、非晶質であるならば、これらの部分からの回折X線像は、Film上では弱い強度で写るはずである。 MoO_3 は成長の条件では非晶質を生み出す場合も存在するので、この条件が仮定された。又若しも白いひも状の部分が結晶中の空洞であるならば、コントラストの非均一性が透過拡大像の中にも現われるべきである。しかし、Fig. 3-6(c)に見られるごとく、一様なコントラストが得られていて、空洞説は否定的である。従って、成長のステップによって、非均一な格子変形をともなう、非常に小さい結晶の集まりか、又は非晶質の物質が、成長の層の間のせまい部分にたまっていると結論づけることが妥当の案に見えた。(021)面に見られるひも状コントラスト周辺部の黒い部分、つまり強いX線反射強度の高コントラストは、上記の非晶性物質の存在によって局所的に生じる格子歪で生じたものと考えられた。Fig. 3-10 に示す MoO_3 のMLD像中にも白いコントラストが現われている(021)、(02 $\bar{1}$)及び(350)面では少しづつ現われ方が異なっている。これは螺旋軸位の

存在かと思われすが、その Burger's ベクトルは定められなかった。従って、すでに転位は結晶の中から抜け出して消滅しており、少量の非晶質成分が転位芯に相当するように残ったのではないかと推定された。

Fig. 3-11 と Fig. 3-12 では転位らしきコントラストが明瞭に見られる。反射面ベクトルと転位の Burger's ベクトルが直交する場合、あるいは反射面内に転位の Burger's ベクトルが存在する場合には、その反射面の回折像の中には転位の姿が見られぬことは良く知られている。その面内での Atom の変位では X 線の反射角度に変化が現れぬからである。従って、この Fig. 3-11, 12 に見られる試料の場合の転位は (043) 面に在る又は転位の起こきものと推定された。(350) 面反射とその他の反射面を比較してみると、母結晶からいちぢく方位のずれた部分が観察される。又、反射面の方位によって、歪の入り方が一様でないことが観察される。この事実は、MLD 法ではいちぢく結晶歪みが存在していても反射像が撮れる事を示していると共に、これらの像を解釈する理論的方法は、完全結晶から、一般に良く知られているモザイク状態の結晶に至るまで、何等特別な制約条件をつけることなく、連続的に適応可能な方法でなければならぬ事を示している。

3-4 銅ホイスカー結晶の観察

銅のホイスカー結晶の成長については従来いろいろの説がある (Brenner 1963, Nittono et al. 1969)。又 Latière et al. (1965) は虫果旋状に成長する銅ホイスカーを光学顕微鏡下で観察して、ホイスカーの中心部には虫果旋転位が存在すると結論づけた。ホイスカーの成長には転位が主要な寄与を行うという理論的研究 (Eshelby, J. D. 1961) も在る。ホイスカー結晶の特異な材料強度が注目され、工業的に重要な素材になりつつあるので、ホイスカー中の転位の存在・非存在はホイスカー製造及び研究の面で問題にされつつある。筆者達は銅のホイスカーを還元法で作った際に、右ねじ、左ねじの特異な晶癖を示す単結晶を得たので、MLD 法でホイスカー中の転位の有無を研究した。

尚、この実験の結果は 才6回 X-Ray Optics & Microanalysis 国際学会議 (1971年大阪) に於て発表した。

3-4-(1) 実験条件

銅ホイスカーの還元法による製作は、Brenner (1963) により提案された方法で行われた。

市販の高純度は次化銅の粉末を金筒板を曲げて作ったポットの中に入れ、水素気流中 (5~10 ml/min) で 600~610°C に電気炉で加熱し、3~4 hr 還元する。還元により生じた銅原子は金筒製ポットの壁面から成長するひげ状ホイスカー結晶にその素核として供給される。熱処理終了時には、金筒製ポットの壁面に、多数の長さ数 mm のホイスカーが成長している様子が観察出来る。成長したホイスカーの中には、本実験で用いた虫果旋状のホイスカーの他、双状のもの角柱状のものなども存在した。

X線ターゲットは 10 μm のアルミニウム箔上に蒸着した金の薄膜である。

X線条件は 40 kV 10 μA であり、この場合の X線源サイズは約 5 μm であった。

X線源と試料、試料と写真フィルムの距離は 8 mm 及び 30 mm であった。

使用した写真フィルムは MoO₃ の観察と同じく SAKURA - N と RR であった。

3-4-(2) 結果と検討

Fig. 3-13(a) は右ねじ Cu ホイスカーの MLD 像である。図の中央の矢印は試料が置かれている位置と方位を示している。この写真では X線が紙面の背後から入射する X線光学条件となっている。各反射面の像は、結晶面方位と X線の入射方向との関係で試料像が回転して写像されている事を示している。これらの幾何学的対関係は才四章で詳論する。 Fig. 3-13(b)~(g) は MLD 像のいくつかを拡大してみたもの。 Fig. 3-13(h) は陰影拡大像であり、(i) と (j) は光学像で、(i) はホイスカーの先端端から [100] 軸方向を見た図で、正方形状のネジであることがわかる。 (j) は側面写真

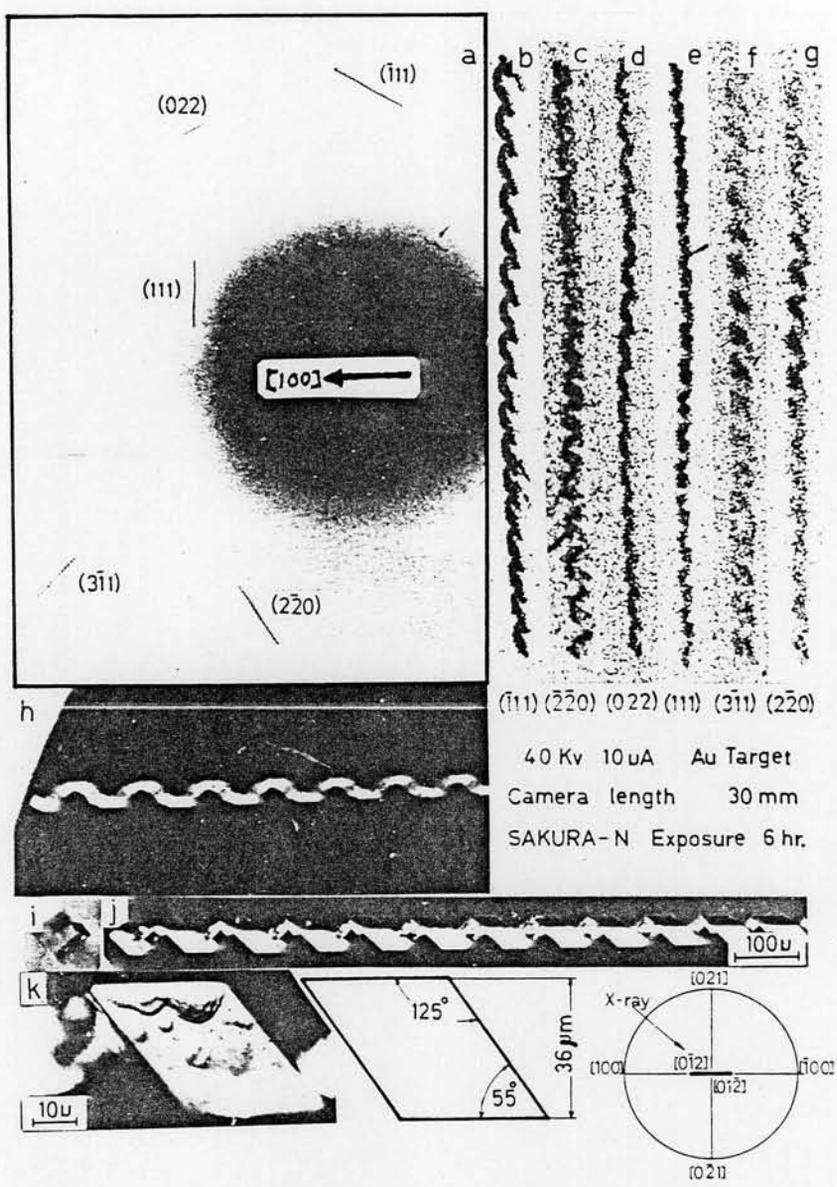


Fig.3-13 Magnified Laue Diffraction images (a,b-g), central shadow image (h), optical images (i), (j) and unit crystal block (k) of a right-hand helical Cu whisker.

四角い断面のねじ状の金針のごとき形が見られる。(K)は一つの螺旋ユニットを示したもので、この写真に見られる様に結晶面にうずく巻状のステップが見られるユニットと全く平らなユニットも見られる(Fig. 3-17 参)。各結晶ユニットの側面は規則正しい菱形をしていた。右下の図は X 線源の入射方向を示すもので $[01\bar{2}]$ 方向から入射していることを示している。このホイスカー結晶は 4つの規則的に成長した $\{110\}$ 面で見られる右ねじの晶癖を有していることがわかる。ねじ一回転分の結晶ユニットは 4つの $\langle 111 \rangle$ 方向に成長した結晶片から成っていることがわかるが、全体としては単結晶であることは Fig. 3-13(a) の MLD 像から明瞭である。(i)(j)(k) 図から見られるが、ホイスカーの先立端から 4番目までのユニットと 10番目から根本までのユニットは良好な晶癖を成しているが、5番目から 9番目までのユニットは (K) 図のような粗れた表面をしていた。この余り良好な晶癖に対応する結晶部分からの回折 X 線強度は、良好な晶癖の部分からよりも強いことが、Fig. 3-13(a), (f), (g) などから明瞭に見られる。これは良好な晶癖部分には歪が入っている事を示している。

各反射面の MLD 回折像に寄与する X 線の波長は、結晶の方位、X 線源と試料の局部的な位置関係によって変化する性質がある。従って、各反射像の X 線強度を本検討するためには、各面ごとの反射波長を詳しく調べなければならぬ。Table 3-1 は Fig. 3-13 に見られる方位関係における、ホイスカーの各反射面の反射波長範囲と、それぞれの回折角度の範囲を示したものである。

X 線源と試料の距離は 8mm であり、1 ユニットの螺旋部分には $36\ \mu\text{m}$ で長さ方向が $90\ \mu\text{m}$ であり、又 X 線源サイズが $5\ \mu\text{m}$ であるので、1 ユニット部分に 1 刺する X 線の照射角は中方向が $4.5 \times 10^{-3}\ \text{rad}$ 、長さ方向が $1.2 \times 10^{-2}\ \text{rad}$ である。(111) 面反射では 0.72\AA から 0.79\AA までの波長が反射に寄与している。従って一ユニットの螺旋部分での波長の変化は 0.07\AA である。これは極めて小さな値であり、又割合で考えても 10% 程度の変化である。

従って、(111) 面と $(\bar{2}\bar{2}0)$ 面の回折 X 線強度を、それぞれ 0.8\AA と 0.6\AA の波を用いて運動学的理

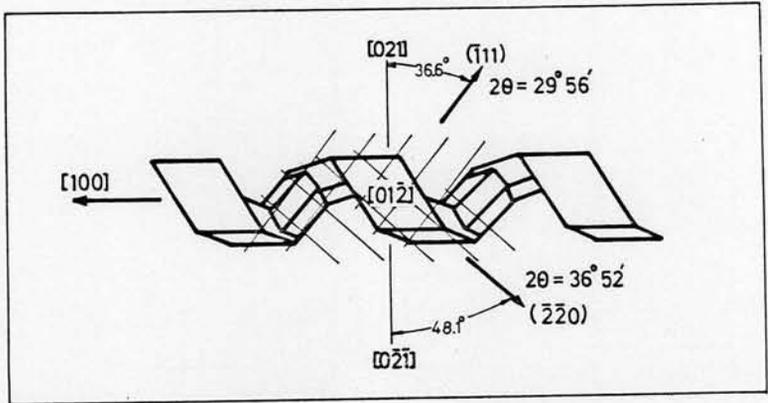
(hkl)	Diff. Angle Range	Wave Length Range Å
111 $\bar{1}\bar{1}1$	10° ~ 20°	0.72 ~ 14
$\bar{2}\bar{2}0$ $2\bar{2}0$ 022	13° ~ 23°	0.57 ~ 10
202	34° ~ 44°	1.4 ~ 18
3 $\bar{1}1$	19° ~ 29°	0.71 ~ 11
422	12° ~ 16°	0.3 ~ 0.41

Table 3-1 Variations of Wavelength
in each reflections of the right-hand helical Cu whisker

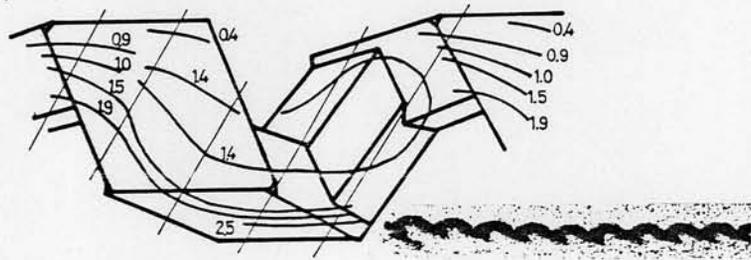
論によって計算した。回折X線の行路長はそれぞれの反射面で $20\mu\text{m}$ 乃至 $40\mu\text{m}$ 位になることが、結晶のユニットモデルを作ってみることで判明した。($\bar{1}11$)面と($\bar{2}\bar{2}0$)面について、上記波長を想定した場合の線吸収係数(μ)と距離(t)の積はそれぞれ $\mu t = 1.3 \sim 2.6$ 及び $\mu t = 0.6 \sim 1.2$ になった。

この結果は、回折X線の通過距離 t が近似的に $1/\mu$ に近いことがわかる。このような微小結晶に於ては、慣例的に回折強度の計算には運動学的理論が適用されている。そしてX線強度は結晶の厚さに比例すると考えても大きな誤差にならないといわれている。結晶中の各々が等しい反射強度を与え、かつ径路によっての吸収を考慮に入れて積分反射強度を求めた。結果を Fig. 3-14 の図中にエンターラインで示した。この計算結果と実験の結果を比較してみた。計算の結果では直線状の最強反射箇所が、各螺旋ユニットに1ヶ所づつあるのに反して、実験的に反た反射強度は、折れ曲つた反射が現われていることが特徴的である。この明瞭な違いは、特に($\bar{2}\bar{2}0$)反射でいささかしくなっている。この折れ曲つたコントラストは転位の存在を示すものと思われた。

同様なMLD像が左まわり螺旋のホイスカーについても撮果少することが出来た。結果を Fig. 3-15 に示す。(a)のグループは(220), ($\bar{2}20$), ($20\bar{2}$) 及び($\bar{2}0\bar{2}$)面の反射を示し、折れ曲つた釘状のコントラストが現われているが、(b)のグループ(331), ($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$), ($3\bar{1}\bar{3}$) 及び($3\bar{1}\bar{3}$)面の反射には対応する強いコントラストは現われていない。(a)グループと(b)グループの対応する上と下の面は直交していることがわかる。このことから折れ曲つた強いコントラストの成因は転位であると言える。そして、そのBurger's ベクトルは $[110]$, $[1\bar{1}0]$, $[10\bar{1}]$ 及び $[\bar{1}0\bar{1}]$ などと決めることが出来る。一つのBurger's ベクトルを持つ転位が、1つのユニット螺旋中の二つの結晶片にまたがっていることから、各結晶片は二つの転位を持っている事が結論される。これらの関係をまとめると、Fig. 3-16のごとき関係にまとめることが出来る。ホイスカーは $[100]$ 方向に向いており、周囲の直角に折れ曲つた矢印は左まわりの成長を示している(ホイスカー



$(\bar{1}11)$



$(\bar{2}\bar{2}0)$

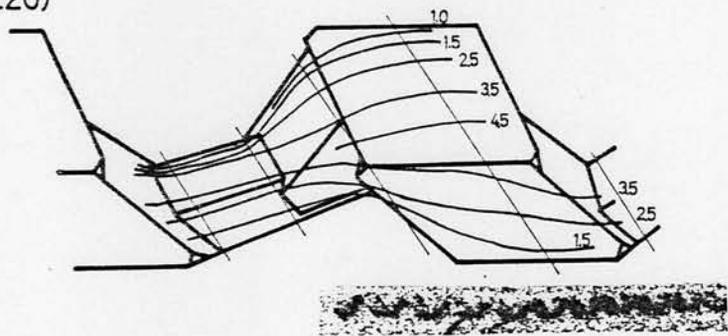


Fig.3-14 Calculated intensity of $(\bar{1}11)$ and $(\bar{2}\bar{2}0)$ reflection of a right-hand helical Cu whisker.

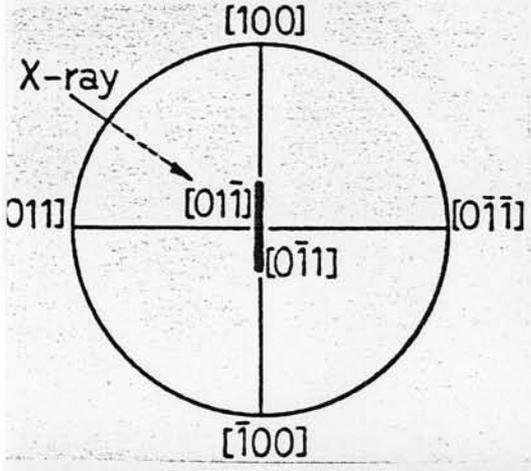
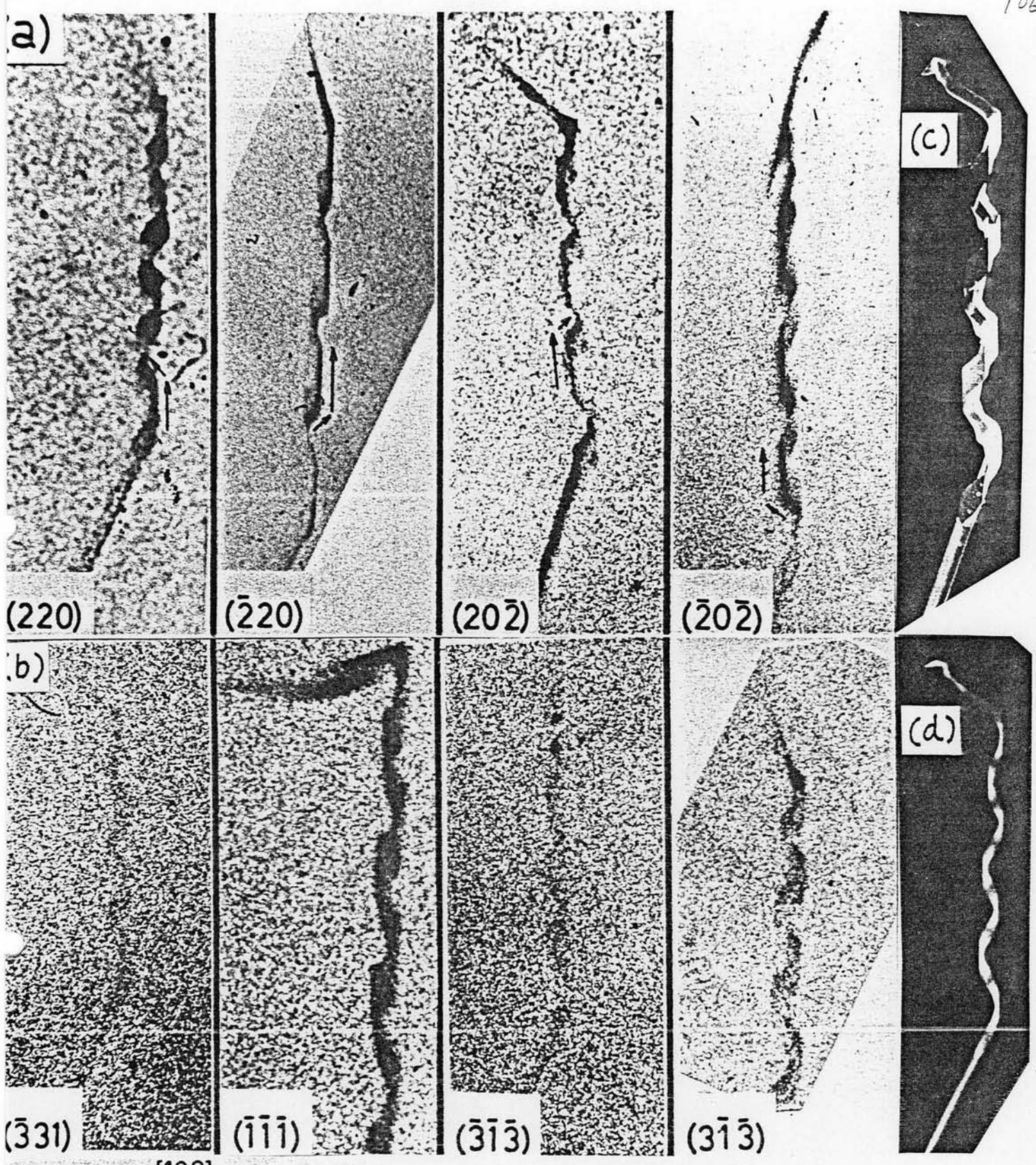


Fig.3-15 左螺旋 Cu whisker
 (a): (200), ~ (2̄02̄) 転位コントラスト (矢印)
 (b): (3̄31), ~ (313̄) 直交面群.
 (c): 光学顕微鏡写真 X200
 (d): X線透過拡大像 (周辺は透過して細く見える)

先立端から見ている図)。{111}面は成長方向の面であり{011}はホイスカーの側面の晶癖である。各結晶片に同じ方位のBurger'sベクトルを置いて行くと、結果として各結晶片が二つのBurger'sベクトルを持つようになってしまう。例えば[111]方向に伸びている結晶片には[101]と[110]のBurger'sベクトルがある。

[111]に接合する[111]方向に伸びる結晶片では[110]の転位は多量であり、新たに[110]方向の転位が含まれている。更に、右手まわり、左手まわりの虫巻旋のCuホイスカー結晶の成長過程はFig. 3-17

に示す図によって理解することが出来る。Fig. 3-17の中央の図(b)は成長方位とホイスカー側面の晶癖面指数及び成長先立端の結晶小片のモデルを示している。右手まわりの虫巻旋ホイスカーでは、一番はじめの結晶片の成長方向を[111]方向とすると、次は[111]であり、次いで[111]となり、4番目は[111]となり一回転する。これらの関係はFig. 3-17(c)に示した。結晶転位の方向を変えると、面の現れ方は異なる様に見えるが、相対的な角度関係は変わらない。Fig. 3-17(b)の結晶モデルは、(a)図に示した8面体の小結晶ブロックを多数はめこんで作ることが出来た。又、二つの転位の組み合わせが結晶成長に有力な手がかりを与えている様に見える。しかし、転位の方向が、いずれもEshelby (1961)に指摘されたように成長軸の方向を向いていない事が

わかった。 Fig. 3-17(d)は、同結晶の走査電子顕微鏡像で、各結晶ユニットが極めて規則的に出来上っている様子が鮮明に観察出来た。

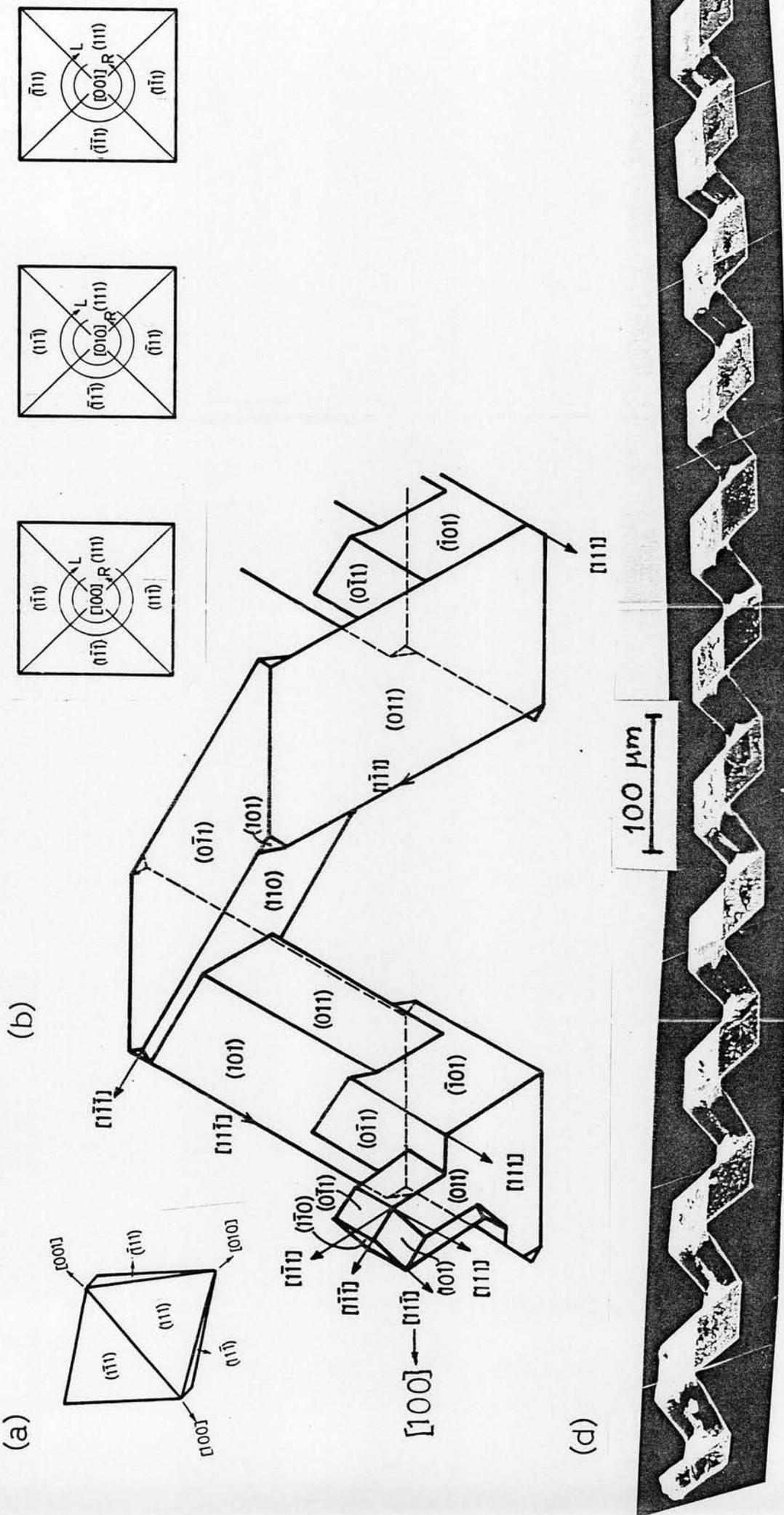


Fig. 3-17 Morphology of helical Cu whisker
 (a): a model of unit crystal block, (b): habit of helical
 whisker, (c): sequential appearance of growing direction around
 central growth axis, (d): a scanning electron micrograph of
 right-hand helical whisker.

3-5 シリコン単結晶中のポンデル干渉効果の観察

3-3) 及び 3-4) 節で論じた X 線回折実験の結果は運動学的理論で充分に理解出来る範囲の現象であった。従来からラウエ回折は白色 X 線を使用するのであり、X 線発生過程に於ける各 X 線光子の間には因果性が無いので、それが結晶試料に同時に飛来しても、ある時間間隔で積分して観測する通常の方法では干渉性は消滅すると考えられている。そして、各 X 線光子は Born 散乱を行い、一回の散乱過程で回折し、それ等が検出器で X 線強度として積分されると考える方法が常識として流通している、運動学的近似である。従って、ラウエ回折については多重散乱を取り入れた、波としての回折干渉性を示す動力学的理論の展開は必要であると考えられていた。

ポンデル干渉効果は理論的には Ewald が 1917 に予告しており、実験的には Kato 及び Langi によって 1959 年に単色 X 線を用いて観察され (Kato & Lang 1959)、以来多くの精緻な理論と実験が展開された事は良く知られている。(Uragami 1969, Homma et al. 1966, Hattori et al. 1965, Tanemura et al. 1972, Aldred et al. 1973, Kato 1969) この現象は極めて動力学的な現象と言える。ところが白色 X 線を使用したラウエ法でもこのポンデル効果は観測出来た。(Hashimoto, Kozaki, Ohkawa 1965, Kozaki, Ohkawa, Hashimoto 1968) この MLD 法の X 線光学的像構成については次章で詳論するが、一つの入射面を以てみれば単色 X 線である。そして隣合った二つの波長の異なる、因果関係の存在しない波同士の間に干渉性が存在し得るのか否かが、問題である。

3-5-(1) 実験方法

本実験に用いた Si 単結晶の一つは $\langle 111 \rangle$ Cut のウェーハーで N 型不純物が拡散してある半導体装置用の素材であった。もう一つは Si の完全単結晶である。

一辺が約1cm位の正方形状の結晶小片を母結晶より切り出し、研灰してウエッジ角約 20° を持たせる様にした。研磨は手持ちの研灰台 (Fig. 3-18) にワークで結晶を固定し、ガラス板上に溶いた研磨材で徐々に研磨した。研磨材はカーボンランダムを水に溶いて使用した。粗研磨は $\#400$ 、仕上げ研磨は $\#3000$ の研磨粉を用いた。研磨終了後、試料は研灰台から外し、水で洗い、研磨材などを落した後、ベンゾール、アセトン、アルコールの順に洗浄した。次いで、直至約1.6cmの石英ガラス管の中へArガスと共に封入し、 1300°C で約5時間火焼金た。徐冷した試料を封入管より取出し、8%のHF溶液で表面層をエッチングした。

X線条件は厚さ $20\mu\text{m}$ のアルミ箔に金を $1\mu\text{m}$ 蒸着したターゲットを使用し、40kV、10mAの電子線でX線源サイズ約 $5\mu\text{m}$ であった。X線写真フィルムはSAKURA NRB μ RRを用いた。露出時間は4時間を要した。この時のX線光学系をFig. 3-19に示す。X線源-試料距離は約1cm、試料-フィルム距離は約5cm位であった。

3-5-(2) 実験結果

Fig. 3-20は半導体装置用の不純物が拡散している歪んだSi結晶のMLD像である。方位の分布と、不純物の析出の様子が、いくつかの反射面に見られる。(313)と(242)面の反射には湾曲したペンデル干渉条高がウエッジ領域に見えている。しかし、火焼金たが不十分な場合には、この干渉条高は見られなかった。Fig. 3-21は同様な撮影条件であるが試料は完全結晶である。この撮影は金の蒸着ターゲットを使用し、原子核実験用乾板を用いた。

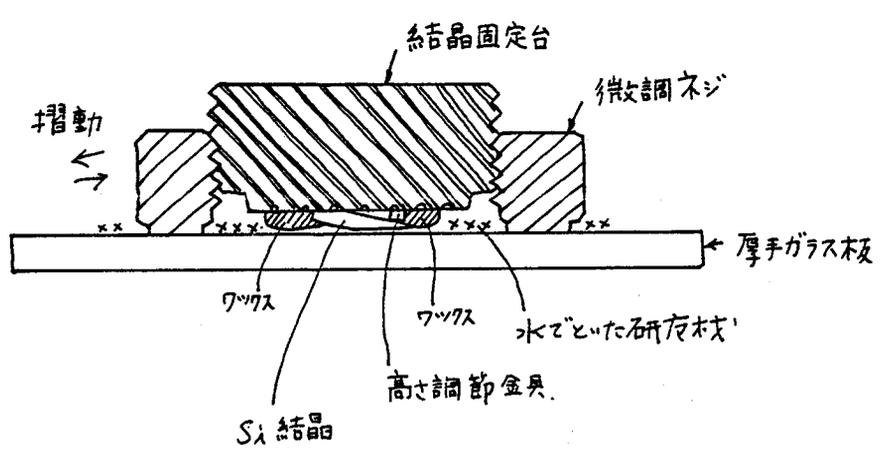


Fig. 3-18 結晶研磨法.

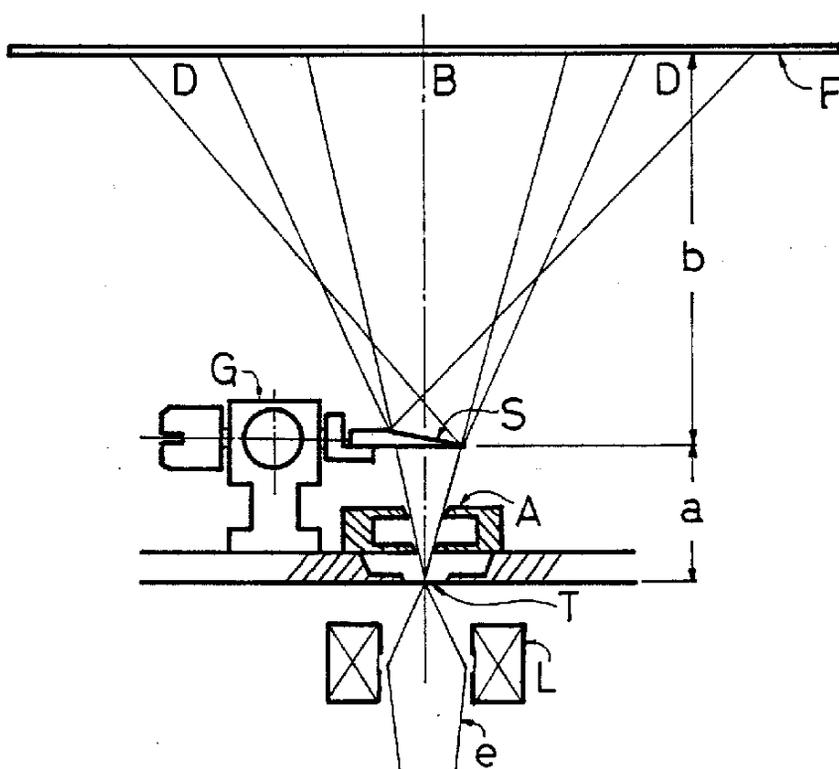


Fig.3-19 An optical arrangement for taking the pendellösung fringes by MLD

(e): electron beam, (L): focusing electromagnetic lens,
 (T): target metal foil, (A): X-ray aperture, (S): specimen crystal,
 (G): simple gonio-stage, (B): central shadow image,
 (D): diffracted Laue image, (F): X-ray film, (a): target-specimen distance, (b): camera length.

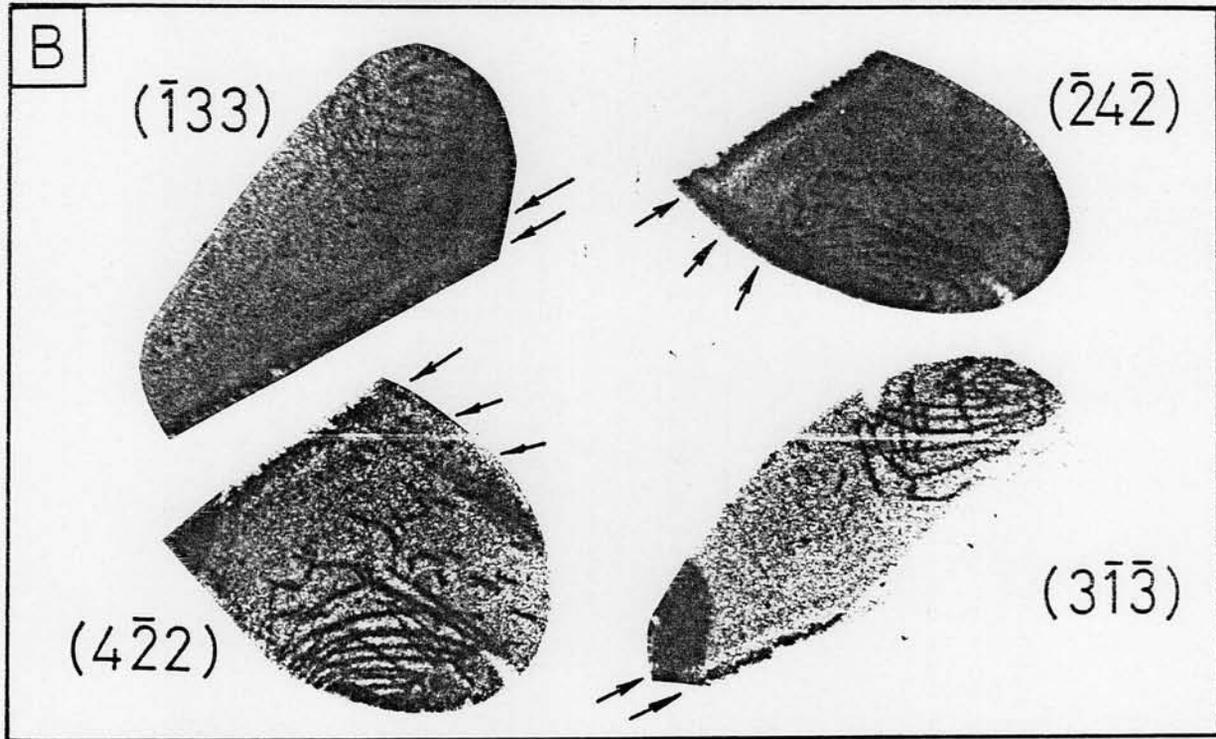
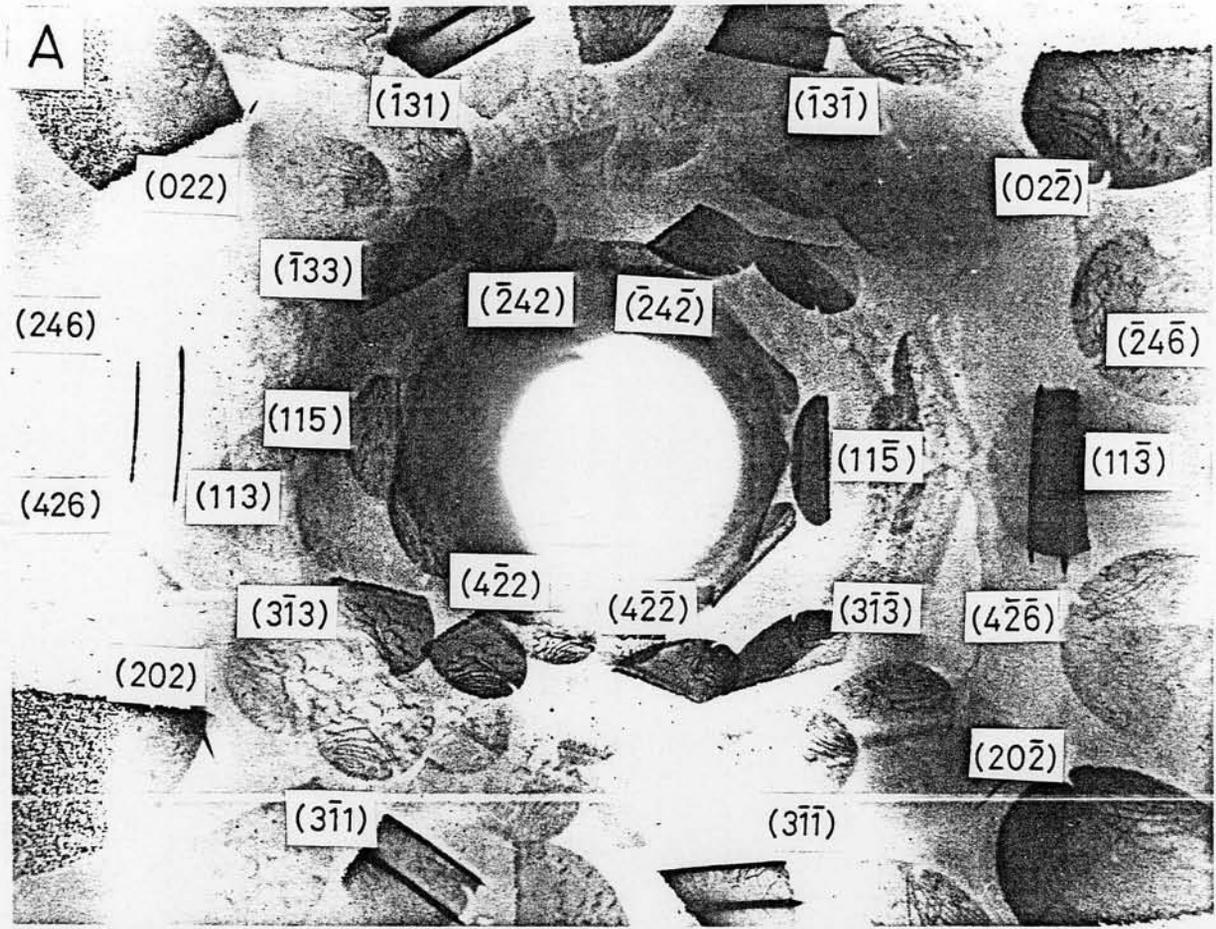
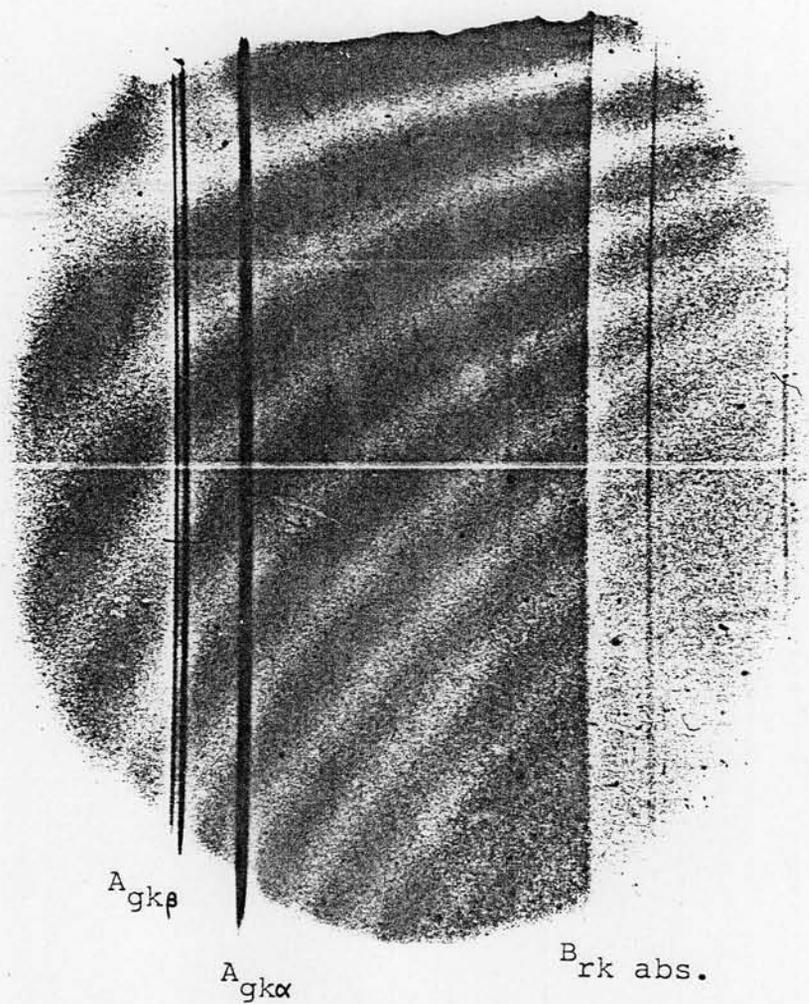


Fig.3-20 Pendellösung fringes appearing in the MLD image of a distorted Si crystal wafer
 (A): the MLD image, (B): some images showing pendellösung fringes.



Si ($\bar{1}11$) reflection

Fig.3-2/ Pendellösung fringes appearing in a perfect Si crystal taken by MLD method.

3-5-(3) ホンテール干渉縞の形成

Kato & Lang が 1959 年に初めて X 線でホンテール干渉縞の撮影に成功した時の方法は、

約 40° のウィグダ角の Si 単結晶 111 反射を ラング法の走査像により $AgK\alpha$ で撮影した平行な干渉縞であった。多数の実験が行われたが、鍵形のホンテール干渉縞は、ウィグダ角 21°20' の Si 単結晶で湾曲透過型の X 線モノクロメーターで単色化した $MoK\alpha$ による 440 反射の中に見られた。この現象は運動学的理論では説明されず、多重反射を列入した動力学的理論 (Zachariasen 1945) を用いて解析が試みられたが、球面波理論の必要性が指摘された。Fig. 3-22 に示された分散関係により通常の平面波理論で波動ベクトルを計算すると (Kohra 1960) (3-2) 式になる。

$$\vec{k}_h^{\pm} = \vec{k}_{h0} + \frac{|\varphi_h| \sqrt{\gamma_h}}{2\lambda \sqrt{\gamma_0}} \left\{ (W \mp \sqrt{W^2 + 1}) \frac{\vec{v}_e}{\gamma_h} + (W \pm \sqrt{W^2 + 1}) \frac{\vec{v}_a}{\cos \theta_h} \right\} \quad \text{--- (3-2)}$$

Fig. 3-22 から干渉縞の方向は $\Delta \vec{k}$ ベクトルに垂直であることが分る。又干渉縞の間隔 Λ は次の如く求まる：

$$\Lambda = \frac{1}{|\Delta \vec{k}|} = \frac{\lambda}{|\varphi_h| \sqrt{(1+W^2) \gamma_h / \gamma_0}} \quad \text{--- (3-3)}$$

Kato の実験で Si 440 反射の断面回折像 ("Section pattern" は Kato の命名による) の中に見られた鍵形ホンテール干渉縞は平面波理論では説明されなかった。この結果 Kato は Born の散乱理論の上に球面波理論を展開した。MLD 像では干渉に寄与する X 線の波長成分は白色 X 線である。従って観測されるコントラストは Fig. 3-21 に見られるように双曲線である。干渉縞の波長依存性は (3-3) 式からも分かることが出来る。

3-5-(4) 検討

MLD 像は白色 X 線で構成されるので、個々の X 線光子の間には共鳴的位相関係の存在

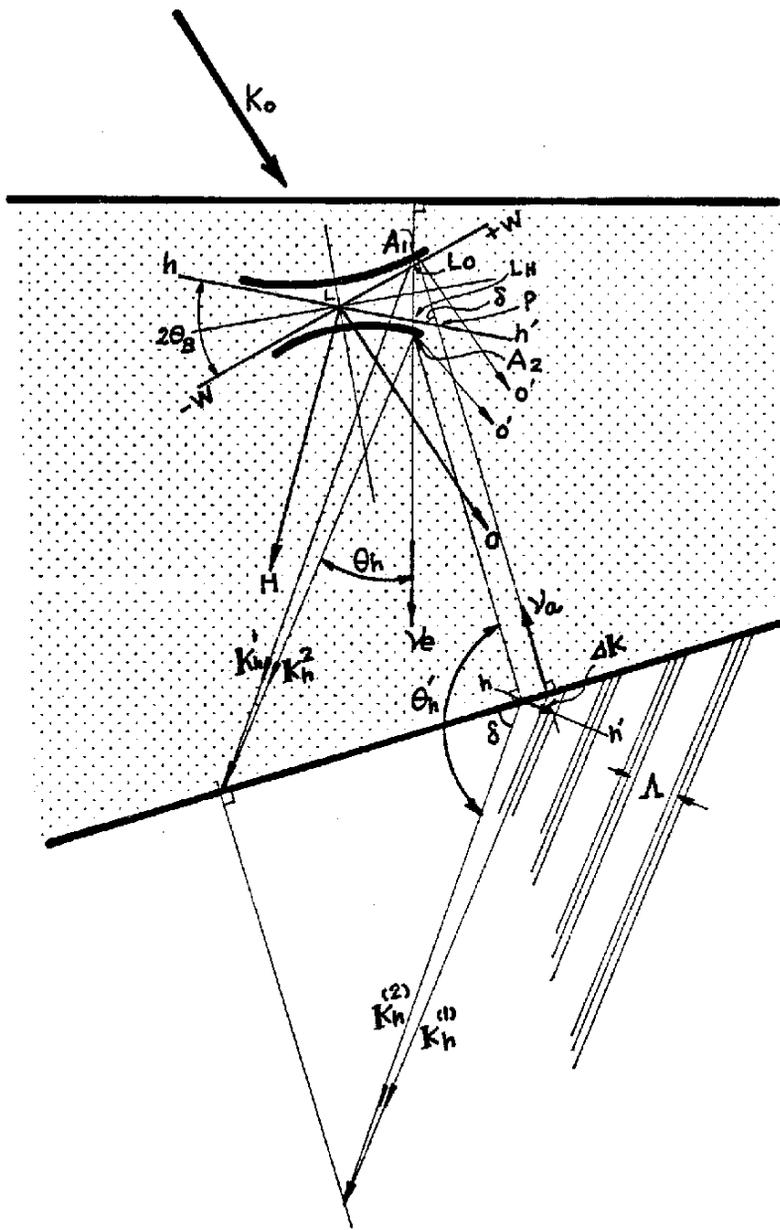


Fig.3-22 optical configuration of pendellösung fringes and conventional dispersion relation (Kohra 1960). Fringe distance Λ is proportional to $1/\Delta k$, however plane wave theory had failed to explain the origin of the fringe in x-ray case.

が信じられていなかった。前節の実験とその解釈に示されるごとく、通常は運動学的理論による説明により回折強度の加算だけで問題は処理され、多重反射にもとづく動力学的原因は必要とされなかった。しかし、本節で示した Fig. 3-20, Fig. 3-21 に示したごとく、白色X線によるMLD像の中にも干渉現象は存在している。

歪んだ結晶でも局部的には干渉現象が見られる。この異形動的な動力学的現象が、結晶歪の有無にかかわらず鮮明に認められた。従って、MLD像をより正しく理解するには白色X線の干渉効果が一層研究される要があると認められた。Hattori et al (1965) は単色X線によるポンデル高の中に干渉現象がある事を見出し、独立した偏光X線成分間のX線強度の重ね合わせで現象を解釈した。同じ手法により、Aristov (1980) はMLD像中のポンデル高の消滅現象の説明に成功したが、干渉現象の本質的解釈には誤解があるように見受けられた。従って、MLD像中の干渉現象は明解に待たせよう。

通常“断面上のX線強度は”なる命題は、指定された断面前後の単位中当りの平均的値にその断面の強度を代表させて表現しているにすぎない。単位中において急激な変化がある場合は、観測した中で選り、その平均値をあげれば、その単位中当りの強度として、その断面の値を定義出来る。従って、その断面におけるX線強度に、その前後の微小中を乗ずれば、その微小中のX線強度が定義出来る。これは従来の通常考えを記したに過ぎないが、“断面上のX線強度”なる概念の中には、常に“その前後のもの”が伴わねばならない事に注目する必要がある。

MLD像では波長が連続的に変化している方向があるが、隣接した波の間に干渉性の存在を否定すると、上述の意味での“前後のもの”の存在を却捨することになる。従って古典的決定論に代えて、^{幾何的} 或る波長で特徴づけられた入射面内における波動場は厚み“零”の面に残る。しかし、厚みの無い断面はその断面自身の存在も否定する事になり論理矛盾に陥ってしまう。現実には、X線入射面の前後に位相関係のない独立した入射面が無限に近接して存在しても、なおかつ特定の波長で特徴づけられた入射面の前後には有限の中での存在を認めない訳にはいかない。従って隣接した波長の領域は古典的な意味でも重なり合っていると

考えねばならない。従って、その電磁波領域に存在する電子は、前後の入射面にX線が同時に存在し、電磁的
 反作用を行えば、これらの電磁波のエネルギー、波長が異なっても干渉相互作用を受けねばならない。結果として
 観測された現象がMLD像中の干渉縞であると見做された。これらの干渉が扱える新理論が望まれる。

3-6 系 語

3-1) 白色X線によるラウエ回折の光学的方法は二つあり、一つは平行なペンシル状のX線束、もう一つ
 は発散白色X線である。後者を、本論ではMLD法と定義した。

3-2) 3種類目のX線源が可能である

(1). 大きい電子衝撃面積を持つX線管とヒンホルムコーナーの組合せ。

(2). 微小焦点X線管

(3). S'OR

3-3) MgO 結晶の成長ステップ周辺の非晶性物質の析出がMLD法で観察された。

MLD像に非晶性物質のコントラストが生じる原因が論ぜられた。運動学的X線回折理論により、MLD
 像中に観察された異常コントラストの成因は非晶性物質に帰せられた。

3-4) 螺旋状Cuホイスカー結晶がMLD法で観察された。ホイスカー中に転位の存在が認め
 られ、そのBurger'sベクトルの方位が定められた。

3-5) S'OR単結晶中に生じるランデル干渉縞がMLD法で観測された。

この現象は波動場内の多重反射現象の結果生じるもので、MLDでは特に隣り合った波長成分が
 重要な役割をはたしている。従って、白色X線における干渉現象が指摘され、白色X線を含めた新しい
 X線回折の動力学的理論の展開の必要性が論ぜられた。

第4章 拡大ラウエ法の幾何学と回折像コントラスト

4-1 緒言

発散X線法を用いて結晶を検査する方法は古くから使われており長隙ラウエ写真(吉田, 田中(1926))或は収斂X線法(藤原, 1926)などもその例である。これ等は Fig. 3-1 におけるピンホールにより等価的臭X線源を作り発散X線束を得ていた。回折像コントラストの解釈は簡単な幾何学的関係を設定して反射面指数決定・結晶のすべり現象の観察などが行われたが波動力学的解釈には至らなかった。(Gumier (1949), Schulz (1954), Fujiwara (1964)) 白色X線によるX線回折は、最近SORを用いた研究がさかみになりつつある(Kohra 1983)。SORの場合は平行X線であるので回折X線像は像の光学的拡大を伴わず、反射面は単一波長成分で結像するので像解釈は容易である。これに反し、白色発散X線法は一つの反射面による回折像は連続した波長成分によるので像解釈は容易ではなかった(Krishan & Peneva 1968, Aristov et al 1975, 1976)。

写像の幾何学はX線源と試料結晶及び記録用フィルムの配置形状ならびに、それ等の相対的位置関係に依る。本章では、Fig. 3-2 に示したMLD法の場合の写像の幾何学と、波動力学的回折像コントラストの形成について論じる。

4-2 発散X線による写像

Fig. 4-1 に写像の概念図を記した。試料結晶は厚さ ΔZ の平板で水平に置かれ、試料の上部水平面にX-Y座標がおかれ、原臭を試料の中心並びにX線発散コーンの中心に置く。X線源Tは $-Z$ の距離に在り、写像フィルムは試料の座標面から $L-|Z|$ の距離に水平に在るとする。

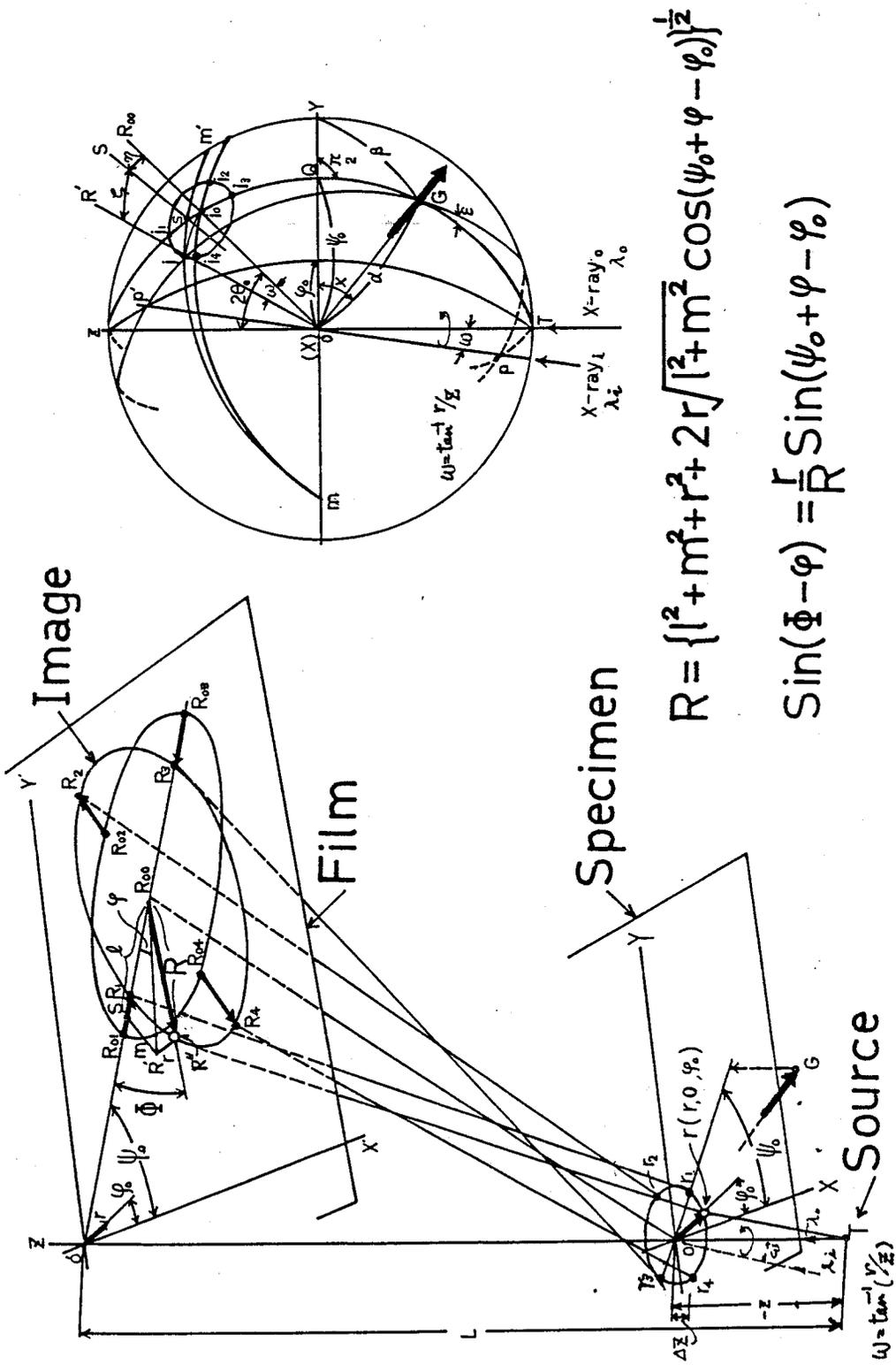


Fig. 4-1 Geometrical relations of point projection between specimen and its image. R_1, R_2, R_3 , and R_4 are projected images of r_1, r_2, r_3 , and r_4 on the crystal. R_0 to R_4 are projected points from origin "0" with angular incidence ray of ω . Vector R_0, R_1, R_2, R_3, R_4 are equal to parallel shift by the position vector r on the specimen. It is easy to understand the geometrical relations by projection of origin and successive parallel shift as stated above. Spherical angular relations right shows relation of angular parameters.

写真フィルムはX線源TからLの距離にあるが、像拡大を有効に利用するためには $L > 3\lambda$ には必要が

あるとは Fig. 3-2 に示す MLD法の原理図から明らかである。結晶の反射格子ベクトルを G とし、試料面上の

座標原点におく。運動学的散乱X線を考える場合は、回折X線がすべて一回散乱であるので、試料の立体的

構造のあらゆる所から直接出て来ることになるが、結晶が完全に逆く、動カ学的回折現象の場合、MLD法のごとき、

いわゆる Lane Case の回折を行う場合には、結晶の出射側表面で積分された波が外部へ放射されることになる。

したがって、この場合、試料の出口側表面から回折X線が現われると考える。Fig. 4-1 の場合はX線の出口は、X-Y

座標面に在ると考える。

X線反射コン内にある一点 $P(r, 0, \varphi_0)$ の射像を考察する。r は試料上の動座標で、 φ_0 はX軸から測

った角度である。X線反射の極座標が Fig. 4-1 右側にまわめてある。反射面ベクトル G は X軸から α , Y軸

から β の角度に在り、X-Y平面上の射影角度は極座標から ψ であることが分る。

線源Tから波長 λ_0 のX線が原点Oで q ベクトルの表わす反射面で Bragg 反射すると Bragg 角を θ_B とし、フィルム

面上では R_{00} の位置に達する。この関係を抜き出した図を Fig. 4-2 にまわめた。極座標から分る通り

$\angle GOj_0 = \angle GOT = \frac{\pi}{2} - \theta_B$ である。又、反射面格子間隔は $d_g = \frac{1}{|G|}$ であるから、Bragg の条件により、

$$\lambda_0 = 2 \frac{1}{|G|} \sin\left(\frac{\pi}{2} - \angle GOj_0\right). \quad \text{----- (4-1)}$$

(4-1)式から回折像中心に寄与するX線の波長が求まる。写像の中心位置を精度良く見つけるには、第三章の

実験例のごとく、試料の中心位置に微小絞りを入れて二重露光を行う方法がある。

一般の点 $P(r, 0, \varphi_0, r \neq 0)$ からの写像は、二段の手続で容易に幾何学関係を見出せる。

まず P 点を原点Oに水平移動 L , $\omega = \tan^{-1}(r/z)$ ----- (4-2)

の角度でX線を入射させたと考える。極座標では P 点から波長 λ_0 のX線が入射するよりに書いている。

λ_0 が Bragg 角 θ_B' で回折されて R' 方向へ散乱される。この場合 $\angle GOP = \angle GOj = \frac{\pi}{2} - \theta_B'$ である。

従って Bragg の条件から:

$$\lambda \lambda = 2 \sqrt{G_1} \sin \left(\frac{\pi}{2} - L G_0 \right) \quad \dots (4-3)$$

Film 面上では R' 点に射像されている。ここで r 点を元へもどす。X 線源も T へもどしている。すると、Film 上で r と距離 r だけ水平移動した R'' 点に射像点は移る。この Film 上の関係は Fig. 4-3 に示す。試料上の点 r_1, r_2, r_3

及び r_4 も同様の手続で Film 上に射像される。すなわち、 r_1 はまず R_0 へ行き平行移動で R_1 , r_2 は R_0 へ行き平行移動で R_2 , r_3 は R_0 へ行き平行移動で R_3 , r_4 は R_0 へ行き平行移動で R_4 へ行き射像されている。試料上での $r_1 \rightarrow r_4$ の移動と Film 上での $R_1 \rightarrow R_4$ の移動の方向が反対になるのは、 $\Sigma = \Sigma$ で回折

X 線のクロスオーバーが生ずるためである。従って回折像は一見裏がえったものとなる。従って、Fig. 4-1 で ψ_0 方向と ψ_0 方向に垂直方向では回折像の拡大率も異なっている。

試料上の r 点 ($r, 0, \varphi_0$) の射像点 R'' を求める方法:

r 点の射像関係は極図形より明瞭だが、Fig. 4-3 及び Fig. 4-4 にまとめた。

球面三角形の定理により、Fig. 4-4 を参照して、

$$\cos \left(\frac{\pi}{2} - \theta_B' \right) = \cos \left(\frac{\pi}{2} - \theta_B \right) \cos \omega + \sin \left(\frac{\pi}{2} - \theta_B \right) \sin \omega \cdot \sin \left(\frac{\pi}{2} - (\psi_0 - \varphi_0) \right) \quad \dots (4-4)$$

よって、 $\theta_B = \frac{1}{2} \arctan \left(\frac{R_0 \omega}{L - z} \right)$, ψ_0 及び φ_0 は試料の設定により定まり、 ω は (4-2) で定まっている。

$$\text{従って、} \quad \theta_B' = \arcsin \left\{ \sin \theta_B \cdot \cos \omega + \cos \theta_B \sin \omega \cdot \cos (\psi_0 - \varphi_0) \right\} \quad \dots (4-4a)$$

$$\text{同じく Fig. 4-4 から} \quad \frac{\sin \omega}{\sin \varepsilon} = \frac{\sin \left(\frac{\pi}{2} - \theta_B' \right)}{\sin \left(\frac{\pi}{2} - (\psi_0 - \varphi_0) \right)} = \frac{\cos \theta_B'}{\cos (\psi_0 - \varphi_0)} \quad \text{但し} \left\{ \begin{array}{l} \theta_B' < \frac{\pi}{2} \\ \psi_0 - \varphi_0 < \frac{\pi}{2} \end{array} \right\} \quad \dots (4-5)$$

$$\therefore \quad \sin \varepsilon = \frac{\sin \left(\frac{\pi}{2} - \theta_B' \right)}{\sin \omega \cdot \sin \left(\frac{\pi}{2} - (\psi_0 - \varphi_0) \right)} \quad \dots (4-5a)$$

$$\text{同じく Fig. 4-4 を参照して、} \quad \begin{aligned} \sin \zeta &= \sin \varepsilon \cdot \sin \left(\frac{\pi}{2} - \theta_B' \right) = \sin \varepsilon \cdot \cos \theta_B' \\ &= \frac{\cos^2 (\theta_B')}{\sin \omega \cdot \cos (\psi_0 - \varphi_0)} \end{aligned} \quad \dots (4-6)$$

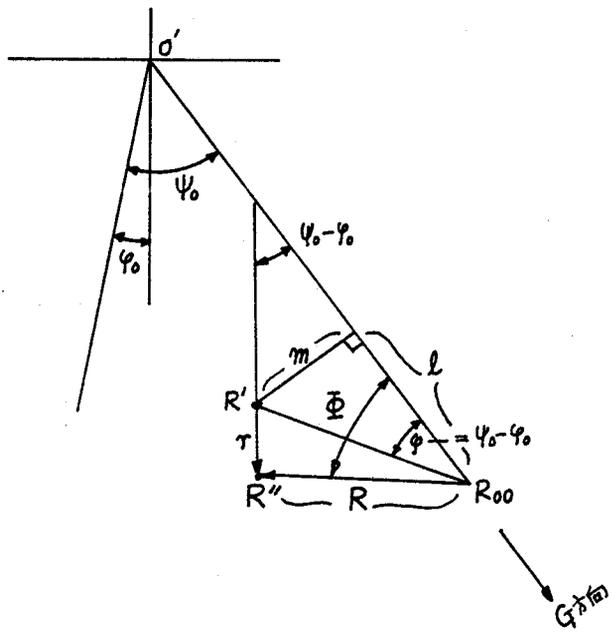


Fig. 4-3. Film上の射像関係

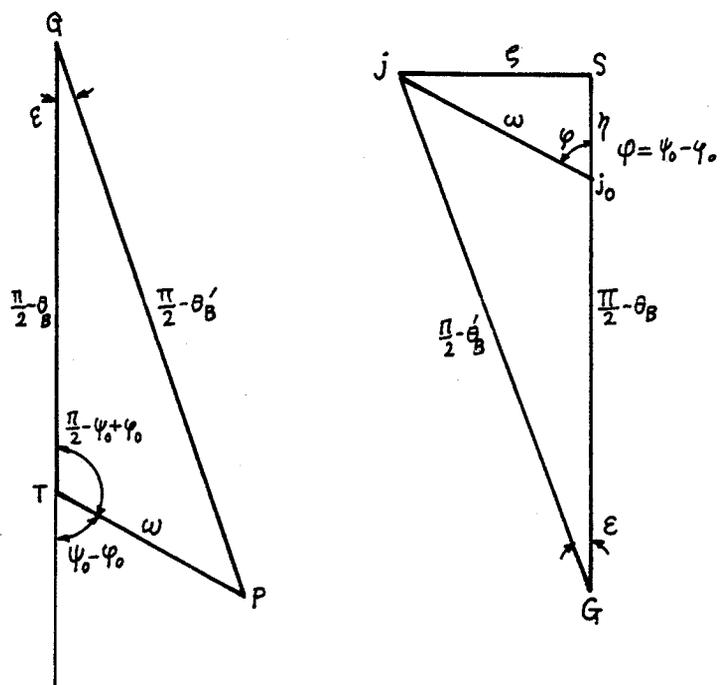


Fig.4-4 1 稜の射像の角度関係

同じく Fig. 4-4 を参照し

$$\cos \eta = \cos W / \cos \zeta = \frac{\cos W}{\cos \left\{ \sin^{-1} \left[\frac{\cos^2 \theta_0'}{\sin W \cdot \cos(\psi_0 - \varphi_0)} \right] \right\}} \quad \text{--- (4-7)}$$

Fig. 4-3 図中の l 及び m は Fig. 4-2 を参照し.

$$\begin{aligned} l &= R_{00} - (L - Z) \tan(2\theta_B - \eta) \\ &= (L - Z) \left\{ \tan 2\theta_B - \tan(2\theta_B - \eta) \right\} \end{aligned} \quad \text{--- (4-8)}$$

$$\begin{aligned} m &= \frac{(L - Z) \cdot \tan \zeta}{\cos(2\theta_B - \eta)} \\ &= \frac{(L - Z) \tan \left\{ \sin^{-1} \left[\frac{\cos^2 \theta_0'}{\sin W \cdot \cos(\psi_0 - \varphi_0)} \right] \right\}}{\cos(2\theta_B - \eta)} \end{aligned} \quad \text{--- (4-9)}$$

Fig. 4-3 図を参照し. R'' 点のフィルム上の座標は R_{00} 点を基準として求まる:

$$\left. \begin{aligned} R'' - R_{00} &= R = \sqrt{l^2 + m^2 + r^2 + 2\sqrt{l^2 + m^2} \cdot \cos(2(\psi_0 - \varphi_0))} \\ \Phi &= \psi_0 + \varphi_0 + \sin^{-1} \left[\frac{r}{R} (2(\psi_0 - \varphi_0)) \right] \end{aligned} \right\} \quad \text{--- (4-10)}$$

(4-2) 乃至 (4-9) 式を (4-10) 式に代入することにより. 試料上の $r(r, 0, \varphi_0)$ 点は Film 上の R'' 点へ射像される. 以上の計算で独立変数は G バックルの極座標上の位置と. カメラ定数 (L 及び Z) 及び試料上点座標 $r(r, 0, \varphi_0)$ である. しかし. MLD 像撮影時には結晶の方向は未知で. G バックルの位置はラウエ図形から求めはならない. 上述のこゝと. 微小絞りを原系に置いて. R_{00} を求めることが出発点となる. G バックルの方位が決まれば. 上述のこゝと $r \rightarrow R''$ 又 $R'' \rightarrow r$ の一対一射像関係が出来るので. MLD 図析対象は. 上述のこゝと裏がえしの変形された像ではあるが. 試料上の絞りで切り取られた視野の反射面 G による写像であると言える.

4-3 MLD 像コントラストの計算.

MLD 像の写像関係は前節で求められたので Film 面上での回折 X 線強度に関する取扱いを本節で論ずる。MLD 像の拡大率は像の場所毎に変化しているので、結晶の射出側表面の一處より回折散乱された X 線強度はこの倍率の二乗の割合で減衰し、対応する写像奥へ達する率になる。反対に、観測側で測定した X 線強度が結晶内現象と正確に把握するには、この増幅場所での拡大倍率を知り必要がある。

試料上の座標 $r(r, \theta, \varphi_0)$ と、対応する Film 上の相対座標 $R = R'' - R_0$ の関係は (4-10) により、

$$R = \left\{ l^2 + m^2 + r^2 + 2\sqrt{l^2 + m^2} \cdot \cos(2(\psi_0 - \varphi_0)) \right\}^{\frac{1}{2}} \quad \text{--- (4-10)}$$

と求まっている。従って、拡大率は、Film 上の R'' 奥と l, m 、試料上の r 奥とを引数として、

$$M(R'') \equiv M(r) = \frac{dR}{dr}(\varphi_0) = \frac{\partial R}{\partial r} + \frac{\partial R}{\partial l} \frac{dl}{dr} + \frac{\partial R}{\partial m} \frac{dm}{dr} \quad \text{--- (4-11)}$$

で定まる。

$$(4-10) \text{ 式より、} \quad \frac{\partial R}{\partial r} = \frac{r + \sqrt{l^2 + m^2} \cdot \cos(2[\psi_0 - \varphi_0])}{\sqrt{l^2 + m^2 + r^2 + 2r\sqrt{l^2 + m^2} \cdot \cos(2[\psi_0 - \varphi_0])}} \quad \text{--- (4-12)}$$

l, m は (4-8), (4-9) で求まるが、カウ定数 $(L-Z)$ は h 格子ベクトル方向と、試料上の r 奥の角度 η あり

カウ定数、格子ベクトルは一反射面上では定数 η の h 、結局 $l = l(r), m = m(r)$ として関数関係を持つ。

依りて (4-2) ~ (4-9) 式を用いて、

$$\frac{dl}{dr} = (L-Z) \sec^2(2\theta_B - \eta) \frac{d\eta}{dr} \quad \text{--- (4-13)}$$

$$\frac{d\eta}{dr} = \frac{(\sin \omega \cdot \cos^2 \omega) / Z \cdot - \sin \zeta \frac{d\zeta}{dr}}{\sin \eta \cdot \cos^2 \zeta} \quad \text{--- (4-14)}$$

$$\frac{d\zeta}{dr} = \frac{-2 \cos \theta'_B \sin \theta'_B \cdot \sin \omega \cdot \cos(\psi_0 - \varphi_0) \frac{d\theta'_B}{dr} - \cos \omega \cdot \cos(\psi_0 - \varphi_0) \cos^2 \theta'_B \cdot \frac{\cos^2 \omega}{Z}}{\cos \zeta \cdot \sin^2 \omega \cdot \cos^2(\psi_0 - \varphi_0)} \quad \text{--- (4-15)}$$

$$\frac{d\theta'_B}{dr} = \frac{\cos^2 \omega (\cos \theta_B \cdot \cos \omega \cdot \cos(\psi_0 - \varphi_0) - \sin \theta_B \sin \omega)}{Z \cdot \cos \theta'_B} \quad \text{--- (4-16)}$$

$$\frac{dm}{dr} = (L-z) \frac{\sec^2 \theta \frac{d\theta}{dr} \cdot \cos(2\theta_B - \gamma) - \sin(2\theta_B - \gamma) \cdot \tan \zeta \cdot \frac{d\gamma}{dr}}{\cos^2(2\theta_B - \gamma)} \quad \text{---- (4-17)}$$

(4-10)式から、
$$\frac{\partial R}{\partial m} = \left\{ l^2 + m^2 + r^2 + 2r\sqrt{l^2 + m^2} \cos(2[\psi_0 - \phi_0]) \right\}^{-\frac{1}{2}} \cdot m \cdot \left(1 + \frac{r \cos(2[\psi_0 - \phi_0])}{\sqrt{l^2 + m^2}} \right) \quad \text{---- (4-18)}$$

$$\frac{\partial R}{\partial l} = \left\{ l^2 + m^2 + r^2 + 2r\sqrt{l^2 + m^2} \cos(2[\psi_0 - \phi_0]) \right\}^{-\frac{1}{2}} \cdot l \cdot \left(1 + \frac{r \cos(2[\psi_0 - \phi_0])}{\sqrt{l^2 + m^2}} \right) \quad \text{---- (4-19)}$$

(4-12) ~ (4-19)式を用いて、順次代入して行けば (4-11)式を用いて拡大率が求まる。

R'象における拡大率は求まったが、MLD像を取扱うには、Fig. 4-5に示す波長の変化する方向λと、波長一定の方向Wの方向に合せて扱った方が取扱いは容易である、Fig. 4-3を参照し。

λ方向の拡大率
$$M_\lambda(R'') = M(R'') \cdot \cos \psi \quad \text{---- (4-20)}$$

W方向の拡大率
$$M_W(R'') = M(R'') \cdot \sin \psi \quad \text{---- (4-21)}$$

よって試料上、若くは回折像上任意点の拡大率は求まったので、次は試料のX線射出面上の点P (Fig. 8-1参)のX線強度を求めらる。

従来の回折X線強度の求め方は、理想結晶の場合、波動面の波の振中加算及びモザイク結晶の場合の強度の加算の二通りがある。中間が無かった。良質と劣質の場合を想定して強度計算をする。しかし本論、第三章で論じたごとく、MLD像で観察される結晶の状態は理想状態からモザイク状態まで連続的に存在する。その存在場合に適合し得る回折X線波動の解と第六章で論じたので、本章ではその結果を利用する。

Fig. 4-6に見るごとく、入射X線は必ずある角度のψがγを持っているので、(a)図に見るごとく、

結晶状態が良くと、一部(回折)条件を満足せず強度は弱く、(b)結晶状態が悪くと、回折条件を満足する部分が増え、(c)の結晶状態が良くと、回折強度が増加する。これが所謂モザイクの考え方の基本である。Fig. 4-6(c)は、干渉領域のψがγを示したもので、結晶状態が良くとは、領域は広がる。この(a),(b)の状態は、第六章(6-57)式に示してある。Fig. 4-6(c)は波長の成分の存在である。従来の回折干渉

の状態は、第六章(6-57)式に示してある。Fig. 4-6(c)は波長の成分の存在である。従来の回折干渉

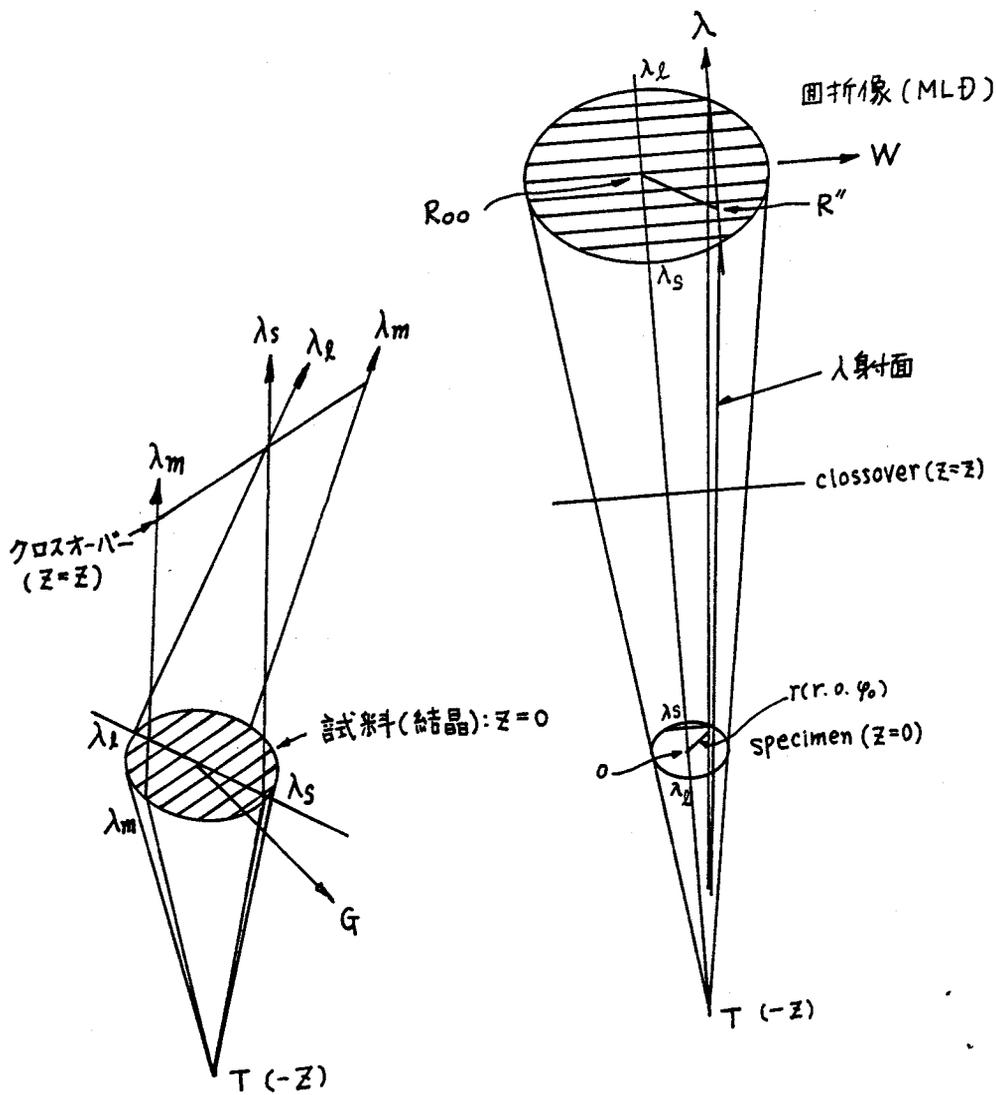


Fig. 4-5 試料面と圓析像面の関係.

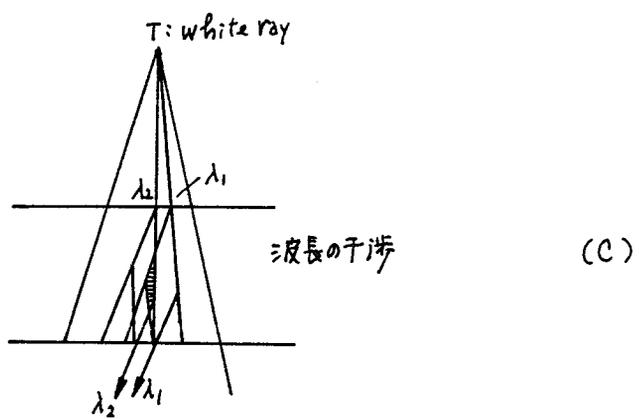
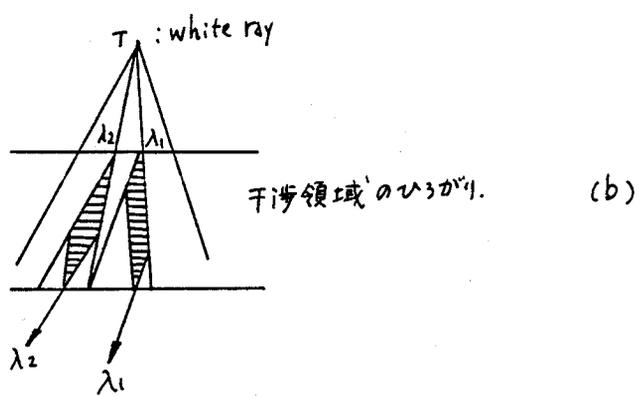
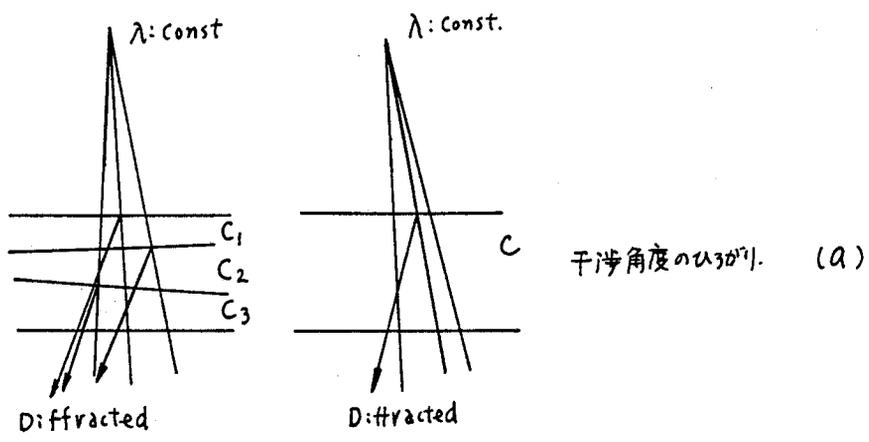


Fig. 4-6 干渉形式の種類

は考えられるのであるが、第五章で論じたごとく、干渉の可能性が有る。従って、結晶の出射側表面の

X線強度は上述の三の種類干渉を重ね合せの方法を導入しなければならぬ。Fig. 4-6に見られるごとく、分散

X線の場合、領域と角度は相互に関連しているで、都合 = 種類のコンプリユーション操作を行なう。従来の完全に

近い結晶における回折波振中は例として(6-3)式に見られるが、

$$\vec{D}(P) = \int_{AD} \phi(P, r') \vec{\Phi}(r') k r_0(r') dr' \vec{e} \quad \text{---- (6-3) より引用}$$

ここで ϕ は結晶内のインパルス応答、 Φ は入射波振中、 k は波動ベクトルの絶対値、 $r_0(r')$ は方向余弦、 \vec{e} は

波動ベクトルの偏光方向の単位ベクトルである。上述のコンプリユーションを行なった結果は次のごとくである

$$\vec{D}_{MLD}(P) = \iiint_{\Delta\lambda, \Delta\omega} \phi(P, r') \vec{\Phi}(r') k D(k-k') r_0(r') D(r'-r'(w)) dr' dk' dw \vec{e} \quad \text{---- (4-22)}$$

$D(k-k')$ は波長の重なりによる干渉を有する成分のコンプリユーション関数、 $D(r'-r'(w))$ は共鳴領域及び

共鳴の角度におけるコンプリユーション関数。これら具体的な形式は、第五章の(5-6)式及び第六章の

(6-55)式及び(6-56)式が具体的に決まると言える。現在、これらの存在が予想出来ると言えらる段階に在る。

(4-22)式が得られるのは、回折X線の強度は結晶の出射面上の奥上で、

$$I_{MLD}(P) = \frac{D^2(P)}{MLD} \quad \text{--- (4-23)}$$

で求まる。(4-23)式は、理想結晶の場合にも、相当に歪んだ結晶の場合にも適用出来る表現であり、

MLDは回折コントラストを有する強度式と言えらる。Film上では(4-20)、(4-21)を用いて、

$$I_{MLD}(R'') = \frac{I_{MLD}(P)}{M^2(R'') = \sin^2 \theta \cdot \cos^2 \theta} \quad ; \quad P=r \text{ と置いた} \quad \text{---- (4-24)}$$

4-4 結 語

試料結晶が平板である場合、撮影フィルムが試料結晶の出射側平面と平行である場合における透過形、*dark case* 設定の場合の MLD 像の字像幾何学が論ぜられ、一対一射像が確認された。又、試料上の任意点に対応する Film 上の像拡大率が計算された。円折 X 線の強度は、第五章、第六章の結果を用いて求めた。強度計算の過程で二種類のコンポリューション関数の導入が論ぜられたが、具体的形式は未決定のままになっている。

第 5 章 相対論的量子力学による白色 X 線干渉現象の考察

5-1 緒 言

単色 X 線によるくさび形結晶のセクショントポグラフ上に現われた、ペンデル高のビート現象は、独立した二つの偏光 X 線成分間の干渉であると論じられている (Hattori et al. 1965)。しかし、直交した偏光間の干渉は考えられないので、Hattori 達は X 線入射面に対して垂直及び平行な偏光成分波の強度の加算による結果として実験結果を説明した。しかし、この場合に於ても、結晶内の波が楕円偏光していると考えれば、通常の振中加算による干渉の考え方は成立するのである。この X 線の楕円偏光の問題については、すでに量子力学的考察が成されている (Molière 1939)。Molière によれば、X 線と結晶内電子の相互作用による結晶内の各座標系における電気分極は、一般的分極率テンソルにまとめ上げられている。このテンソルの性質によって結晶内に誘起される X 線の波が、直線偏光、円偏光、楕円偏光に区別される。一般には X 線の電気ベクトルは楕円偏光とされ、特別に簡単な系の時テンソルがエルミートの、その固有値が実数となり、その独立な固有電気ベクトルは直交した直線偏光になることが示されている (Molière 1939)。従来の古典 X 線回折理論はこの特別な状態の系だけを扱ってきたに過ぎない。それ以外にも、強度加算による理論と実験の一致は一見したと非常に良い (Hattori et al. 1965, Wada and Kato 1977)。これら矛盾した結果の中には、また何か未知なるものが予想される。Molière の解の、2 波近似の場合には、二つの独立解の電気ベクトルは、それぞれ直交する二つの偏光ベクトルの成分の和で表わされるので、二つの解が直交していても成分としては直交していない場合も在り得るのである。後日、Ashkin 達は (Ashkin & Kuriyama 1966) この事実に注目して、偏光の混合 (polarization-mixing) の概念を作った。Molière の立場に立つて、一般的な波の振中加算による干渉が可能であれば、強度加算の方法は再検討を要する。

SORにおける実験では、結晶に入射した波の偏光方向が変わることが報告されている。(Sauvage et al. 1977) Thomson 流の古典論(1914)すなわち Maxwell の力学では、入射 X 線と散乱 X 線の偏光方向は必ずしも結合している。この立場では SOR の現象は不可解である。Sauvage 達は Molière の木箱円偏光の考えを用いて偏光の回転を説明した。Molière テンソルを生み出す量子的素過程では、古典論とは異なり、入射波と散乱波の偏光方向が一致しなくてもよいプロセスがあると考え得る。一つの光子の偏光方向が突然異なった方向に変化する過程が、無限大の速度で生じるとすれば、又時-空間的に別の素過程が同時に生じているとすれば、最早古典的力学の本質の外である。現実には特性 X 線の発生とか電子、正孔の生成・消滅の現象が相対論的スケールで原子内には生じていると見なければならぬ。これ等の同じくに対して明解な説明を与えるためには、既に完成している共変形式の相対論的量子電磁力学の力を借りねばならぬであろう。(Tomonaga (1946, 48), Fukuda et al. (1949 a, b), Schwinger (1948, '49 a, b, 1951 a, b, c, d, '53 a, b, c, '54 a, b, '66), Feynman (1948 a, b, '49, '50, '51))

共変的な量子電磁力学は 1950 年代に少なくとも光子-電子の系では自己矛盾なく完成していた。Feynman の解説による直連的量子描像により X 線回折現象を見るならば、光子が衝突により、そのエネルギーとモメンタムを結晶中の電子に伝達する様子をうかがうことは易しい。そこでは励起された電子又は電子分布が直ちに過剰なエネルギーを二次的光子の形で放出する過程にはなっていない。そしてエネルギーの放出は結晶内原子に生じる共鳴的誘導作用によって確率的に引き起されると推定される。この状況は、結晶中のダイポール振動によって生じる内波 "Wigner Welle" (Ewald 1916 a, b, 1917) に酷似していることに見える。従って光子の入射から放出に至る過程で生じる相互作用は 2 段階で生じていると考えられた。偏光の遷移も又 2 段階で生じると思われた。従って独立であるがエネルギー-モメンタムの近接した二つの光子間の干渉も可能になると思われる。従来の X 線

固相理論では、永年方程式で表現される結晶内電石磁場の中の調和振動子の集合の上に波動場が作り上げられていて、結晶内の振動子の振幅と位相は境界条件によって、きつりと入射波のそれに結合されていた。一方、ある時空奥で各粒子に関するエネルギー・運動量の保存を要請する共変的量子場理論では、結晶内外に出入する光子と結晶内の部分波調和振動子との間には確率的分散関係が求められねばならない。確率的な散乱のS行列が分散関係を支配していると考えられる。更に、物理的に可能な偏光状態の数を数え上げれば、分散する波と、偏光の混合現象も計算し易いであろう。5-2節では結晶内に生じる振動電場が相互作用場の2次の摂動近似によりファイングラフを用いながら計算されている。5-3節ではVertex英(湧出英の訳語がある、四次元時空間で相互作用の生起する英の意味)の近傍の共鳴状態が光子の縮約公式(コンラクシヨンの意、数学的処理での残りの意味と思われすが、物理的には干渉による残ったエネルギーの伝達の事と考えられる)により汎共鳴概念で用いられるQ因子が定義される。Q因子は共鳴状態の質(Quarity)を表わし、ここではBragg条件と結晶の吸収的性質で定義される。5-4節では、新たな動的構造因子の概念が論ぜられる。これは、静止している結晶網面内の電子分布を表現している従来の結晶構造因子とは異っている。動的構造因子は電子の活性化状態或いは結晶中電子状態中に生じる正孔などの活性化された状態なども表わしている。5-5節では結晶の光子の分散関係が論ぜられ、こゝから波動ベクトルの平均像が形式的表現で与えられる。5-6節では偏光ベクトルの回転が論ぜられる。これは偏光混合現象の基本プロセスと考えることができる。

5-2 局所的結晶場の電場の強度

分散面思考による伝統的なX線の取扱いは、Fig. 5-1(a)に見られるごとく、波動ベクトル \vec{k} を持った楕円偏光の入射波は、直交線偏光成分の組合せと考えられ(Molière 1939)、又その一成分

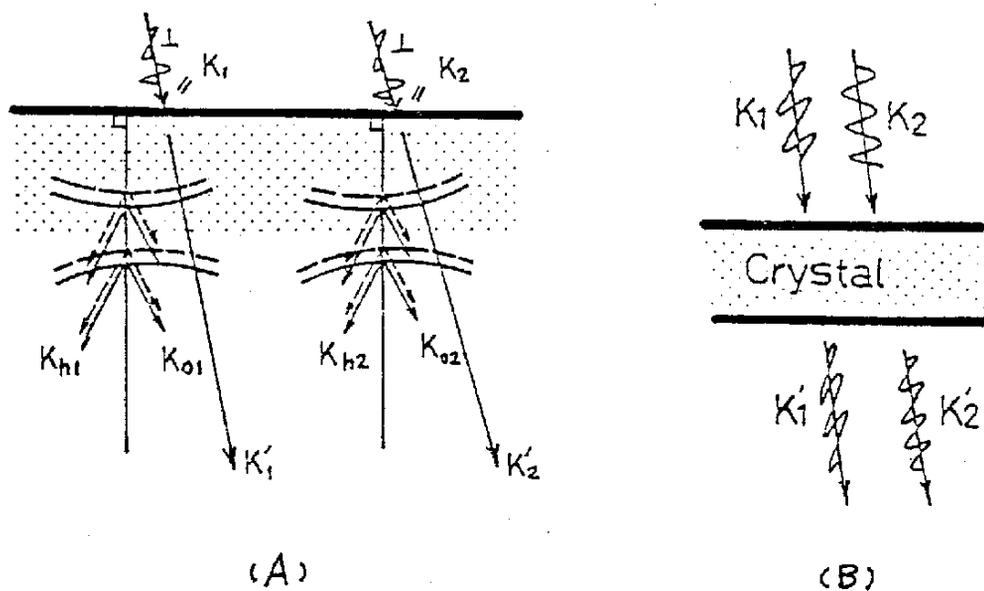


Fig.5.1 Elementary Configuration in Polychromatic Diffraction

When two incidence photons K_1 & K_2 have independent polarization each other, Bragg diffracted photons are K'_1 & K'_2 . A) conventional classical case, B) quantum mechanical case

波によって Bragg 条件下の結晶内に 4 つの平面波を励起することになり、都合 8 つの部分波を生成させる。又、 K_1 と僅に異なる波数ベクトル K_2 を持つ有偏光波も同じく振舞うので、 K_1 と K_2 波が同時に入射している時には 16 箇の部分波が結晶中に生じることになる。相対論的量子電磁力学(以下簡略化して QED と記す)を用いた本論文においては、弾性散乱に限れば、1 つの散乱光子を生み出す場を仮定し、又展開は 2 次の摂動までとする。Fig. 5-1(b)に見られるごとく、エネルギー・モーメント K_1 の入射光子は散乱光子 K_1' 又は、それと僅に異なる K_2' を生成する、どちらが生成するかは確率なもので、これらの 2 つの波は互いに直接したエネルギー・モーメントを持つものと仮定する。(ここで、矢印の無いベクトルを四次元ベクトルの意味で使う。矢印ベクトルは三次元ベクトルの意) もう一つの K_1 とわずかに異なる K_2 光子も上と同様に振舞うとし、以下の議論では K_1 と K_2 が殆んど同時に結晶内波動場に入射した場合を考察する。

散乱の S 行列を用いると、Heisenberg 表示で結晶内電場の期待値 $\langle E_h \rangle$ は、考察対象の時空間の状態ベクトルを $|\Psi_H\rangle$ と略記して：

$$\langle \Psi_H, E_h \Psi_H \rangle = \langle S \Psi_H, S E_h \Psi_H \rangle \equiv \langle E_h \rangle \quad \text{--- (5-1)}$$

と書ける。S 行列の理論は良く知られているので省略するが、(5-1)では考えている時空の領域で S 行列が安定である、すなわち状態が近似的に同等であることが仮定されている。考察対象が孤立系であれば、光子 1 つの消滅は 100% の状態変化を意味するが、光子、電子が多数存在する中の電子、光子の数々の変化は、多粒子系では無変化状態と考えるも良いであろう。(5-1)はその程度の近似的表現である。

S 行列、及び四次元時空における状態ベクトルなどの数学的表現手段は、^{例えば} 真月永、福田(信)、福田(博)著「場の量子論」(岩波書店 昭和 30 年)及び Scadron (1979) による参考文献に記した。ここではその結果を用いる事とする。(5-1)式は S 行列を用いた展開式によって次の表現が与えられる、

$$\langle E_h \rangle = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{n!} \left(\frac{1}{i\hbar}\right)^n \int_{-\infty}^{\infty} \dots \int_{-\infty}^{\infty} d^4x_1 \dots d^4x_n \langle T(E_h, H(x_1) \cdot H(x_2) \dots H(x_n)) \rangle \quad \text{--- (5-1a)}$$

ここで T は Dyson により導入された時間順序演算子であり (Dyson 1949)、 $H'(x_i)$ は時空 x_i における相互作用表示 (Tomonaga 1946) での Hamiltonian 密度である。出所までなく、 x_i は i 番目の四次元時空点を表わし、記号 $\langle |$ は状態ベクトル $\langle \Psi_H |$ を代表している。 (5-1a) 式で表現された結晶中の電場の平均

値は 2 次の摂動まで展開すると、状態ベクトルを更に簡略化して ($\langle \equiv \langle |$, の意味) 次の表式が得られる、

$$\begin{aligned} \langle E_h \rangle = & \langle E_{h0} \rangle + \int_{-\infty}^{+\infty} d^4x_1 \frac{i}{\hbar} \langle T(\dot{A}_h, H'(x_1)) \rangle \\ & + \frac{1}{2\hbar^2} \int_{-\infty}^{+\infty} d^4x_1 \int_{-\infty}^{+\infty} d^4x_2 \langle T(\dot{A}_h, H'(x_1), H'(x_2)) \rangle + \dots \end{aligned} \quad \dots (5-2)$$

上の表式では、理論がローレンツゲージによる共変形式であるので、一定のスカラーポテンシャルを仮定し、電場ベクトルはベクトルポテンシャルの時向微分で表わされるとする。すなわち $E_h = -\dot{A}_h$ とする。 (5-2) 式の積分は Feynman の図的表現を併用して行われた。(Feynman 1949) (5-1) と (5-2) 式における n 次の摂動項は量子統計における確率和の一般項の形をしており、各項独立であると考えられるから、項別に扱うことが出来ると考えられる。しかし結果としての電場の平均値に対しては、各項の存在、非存在が確率事象の形であるにせよ影響を持つと言う意味で相互に結び合っていると考えられる。なぜならば、これらの各確率事象が、原子的天度の空間に生じる現象であるので、平均に影響をおよぼさないと考えられる高次の摂動も、時に、突然低次項へ影響を及ぼす本来的確率的力学過程を無視する事は出来ないであろう。従って (5-2) の 2 次までの展開は近似的に許されても、高次項の影響は残ると考えられる。(5-2) 式の $\langle E_{h0} \rangle$ は結晶中の平均的散乱過程から来る、零次項である。

相対論的現象である電子-陽電子の対生成及び対消滅のごとき現象は一般には高エネルギー領域 ($\sim \text{MeV}$) のものであると考えられている。しかし、ここでは結晶体のごとき凝集体を考えているので、エネルギーの原点を Fermi レベルに据えて考える事にすると、Dirac の方程式は依然として保たれているので (付録参照)、高エネルギー領域で生じるもの以外の現象である電子-正孔の対生成、消滅のプロセスも考へ入れる事が出来る。

(5-2) 式右辺の 2 項の特徴的向題実は、同項が 1 次の摂動項であり、Fig. 5-2 に示す Feynman 図

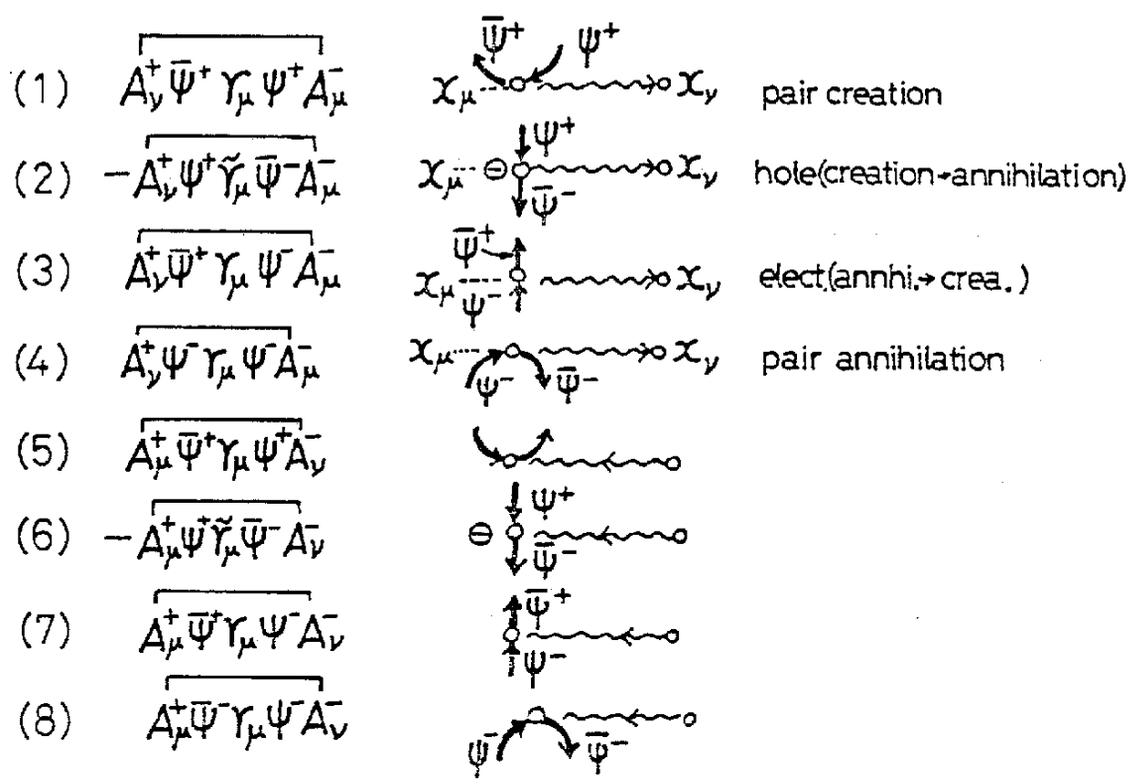


Fig.5-2 The 1st order T-Products & Corresponding Graphs

The Feynman graph for each term is given on the right of corresponding term, where vector potential A_μ is divided into as $A_\mu = A_\mu^+ + A_\mu^-$ and $\dot{A}_\mu = i\omega A_\mu = i\omega(A_\mu^- - A_\mu^+)$; superscript symbol "+" or "-" mean creation or annihilation of a photon respectively. Also in similar way electron field operators are divided into as $\psi = \psi^+ + \psi^-$ and $\overline{\psi} = \overline{\psi}^+ + \overline{\psi}^-$.

から解る通り、光子外線が無い事である。ここで光子外線は入射X線、或は散乱X線のごとき、系の外部へ出入する光の意味で、考えている相互作用の生じる時空点(Vertex)に過去から進行に入射に来る光、或は未来へ向けて輻射される散乱線を意味する。ここで一次の摂動は Fig. 5-2 に示すごとく、8つの独立現象の和で表現されていることがわかる。この中には電子、正孔の生成、消滅過程も含まれているが、光子外線が無い。ここで想い起さるべき事は、光子の輻射、吸収が、半ばんに結晶の中で生起している状況の中の一断面を考察している事である。これらのエネルギー吸収過程は、光子を結晶外へ放出する寸前に結晶内共鳴状態のエネルギー準位を高めるために発生する事が出来るであろう。Fig. 5-2 に示されている波数の記号は光子内線と呼ばれる光子の輻射をともなわない結晶内空間での光速度での光子の伝播を表わしており、共鳴状態を表現していると考えられている(Ohkawa & Hashimoto 1984)。輻射をともなわない電磁波の伝播と言う奇妙な概念は、すでに Ewald (1916, 1917) が提出していることは長く知られている。この相対論的対応物が光子内線と考えられる事もない。Ewald の内線(Winnen Welle)は正にダイホールの共鳴振動の伝播であった。2次の摂動項は128箇の独立な相互作用項で成立している。これらの128の物理的過程の中から生成、消滅などの現象を伴わない、粒子の古典的散乱過程だけを抜き出すと Fig. 5-3 に示す Feynman 図が得られる。これは議論を簡単にする目的で、一般的には相対論的過程を省略出来ないし、又 Fig. 5-3 の過程も相対論的過程を含んでいる古典対応物と言える。図中の M_{23} のごとき標識は2次の摂動の中の3番目なる意味の記号であり、数学的形式は4行4列の行列である。これら8箇の過程を更に説明するため、代表的に M_{21} を Fig. 5-4 に抜き書きした。縦の軸は一つの電子にかかわる因果性を示す光錐の時間軸を表わし、過程(-∞)から未来(+∞)への丁史的伝播を表わしている。他の電子は別の光錐と別の時間軸で表現される。図中 \mathbf{P} は Vertex (相互作用場) に至る入射電子のエネルギー・^{である}モントム(4元ベクトルで、モントムとエネルギーを一語に表現している)。 α_μ でエネルギー

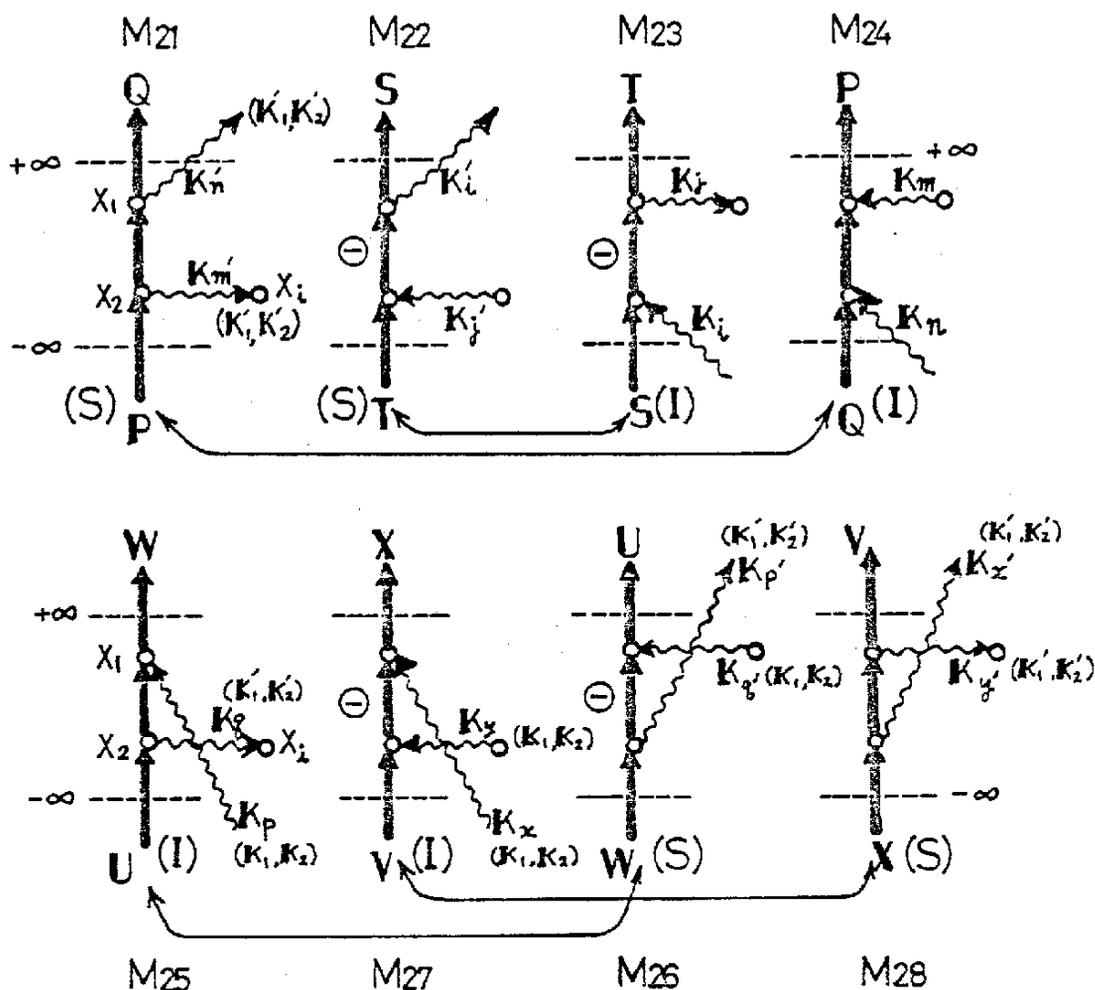


Fig5-3 Typical Patterns in the 2nd order Perturbation

Bold arrow lines are propagating of electrons along time from past to future. Round points are vertexes. Wavy lines coming from $-\infty$ & going out to $+\infty$ are incidence & scattered x-rays respectively. Horizontal wavy lines are inner photon lines of radiationless scattering. X_1, X_2, X_i are all 4-dimensional coordinates; X_2 is placed in past to X_1 . Electron lines sandwiched between two vertex points are internal propagating of electrons expressed by electron contraction.

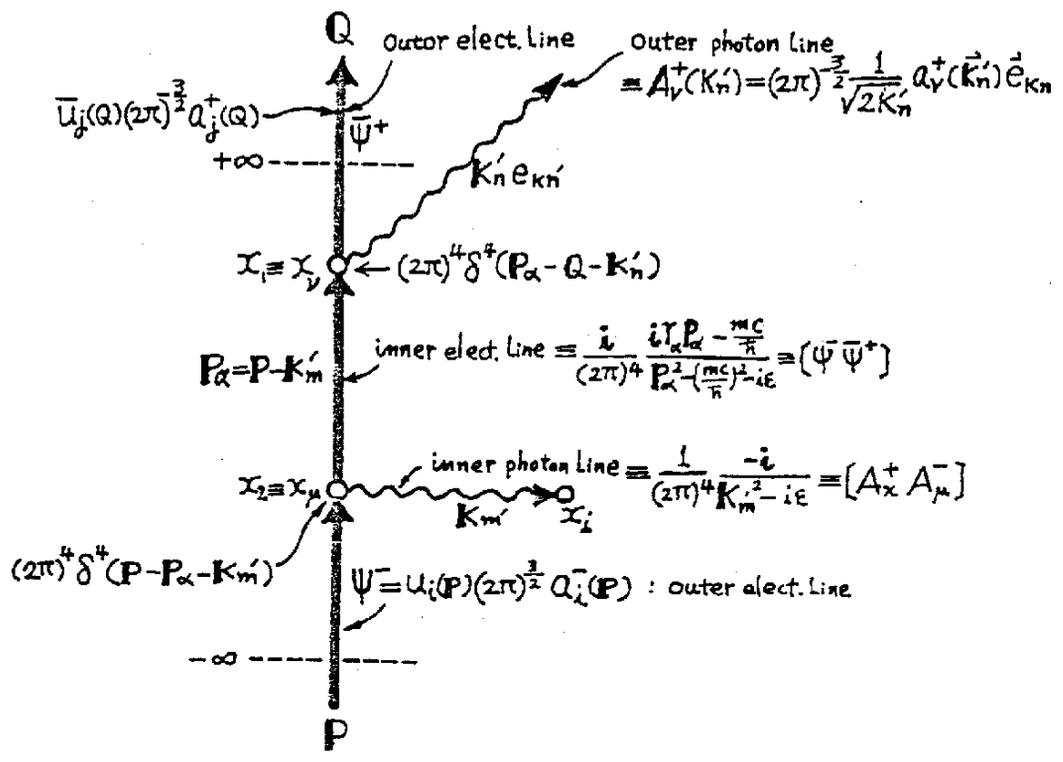


Fig5-4 Relations between each Parts of Feynman Graph and Their Functions

Functional form are given in momentum representations. u_j 's are Dirac's spinors; a_j 's are photon's operators and e_{k_i} 's are polarization unit vectors. K_μ 's are energy-momentum vector of photons and P 's or Q 's are that of electrons; $\bar{\psi}^+$ or $\bar{\psi}^-$ are electron's operators.

エネルギー・モーメント \mathbf{K}'_m の光子を相対論的速度で結晶内空間へ光子内線(上述参照)として放出する。電子のエネルギー・モーメントは $\mathbf{P}'_\alpha = \mathbf{P} - \mathbf{K}'_m$ に変わり次の Vertex X_ν に伝播する。この空間的(≡三次元的意味での)時間的推移があるので電子の三次元的移動を意味するが場所(≡三次元的)が同じことも有り得る。 X_ν で外部空間(結晶外)へエネルギー・モーメント \mathbf{K}'_n で偏光ベクトル $\vec{e}_{\mathbf{K}'_n}$ の光子を放出すると電子のエネルギー・モーメントは $\mathbf{Q} = \mathbf{P}'_\alpha - \mathbf{K}'_n$ となって再び結晶内へ伝播して行く。ここでプライムは記号の数を節約するために用いた記号であるので特別な意味は持っていない。 Fig. 5-4 の中で粒子の各々の状態のわきに記した数学的式表現は、(5-2)式中の2次の摂動項の運動量空間表示(付録参照)であり、それぞれの意味は次のごとくである。

U_i : i 番目の電子の波動関数の振中

a_i^- : スピールの消滅演算子

ψ^- : 電子の消滅演算子

δ^4 : 4次元デルタ関数

$[A_\nu^+ A_\mu^-]$: 光子のコントラクション

$[\psi^- \bar{\psi}^+]$: 電子のコントラクション

$\vec{e}_{\mathbf{K}_m}$: 光子の偏光ベクトル

a_ν^+ : ボソンの生成演算子

A_ν^+ : 光子の生成演算子

$\bar{\psi}^+$: 電子の生成演算子

以上のごとき Fig. 5-4 に示したパラメータを用いて Fig. 5-3 の Feynman グラフを理解すると、

入射白色 X 線の干渉過程を次のごとくに示すことが出来る。 Fig. 5-3 に見られるように、X 線の

入射過程は $M_{23}, M_{24}, M_{25}, M_{27}$ で、又 結晶外への 反射過程は $M_{21}, M_{22}, M_{26}, M_{28}$ で示すことが出来る。

Fig.5-3の独立事象につき、Fig.5-1(b)に示した同時入射のX線条件を考えると、結晶中における白色X線の干渉現象を検討するには1024箇の可能な組合せがある。すなわち、殆んど同時に2種類目の入射光子 \mathbf{K}_1 と \mathbf{K}_2 が結晶に入射し、2種類の光子 \mathbf{K}'_1 と \mathbf{K}'_2 を輻射している。この独立な2方向の偏光が存在することを仮定すると、可能な組合せの数は、(パターン組合せ 4×4 、入射光の組合せは \mathbf{K} と \mathbf{e} を考えて 2×2 、輻射光も同じく 4 、光子内線は \mathbf{K} のみ考えて、2ヶ所有るので 2×2) 都合 $2^{10} = 1024$ となる。この中から M_{25} と M_{26} 及び M_{27} と M_{28} の組合せだけを取り上げて干渉過程を論ずることとする。 M_{25} と M_{26} による結晶内振動電場は、

$$\delta E_2 \vec{e}_m = (2\pi)^{-4.5} \left[\frac{(2[K_0 + 2\pi g_p])^{-\frac{1}{2}}}{\mathbf{K}_g^2 - i\epsilon} \left\{ \bar{u}_j(\mathbf{W}) \gamma_\nu \frac{i\gamma_\alpha (\mathbf{W} - \mathbf{K}_0 - 2\pi \vec{g}_p)_\alpha - \frac{mc}{\hbar}}{(\mathbf{W} - \mathbf{K}_0 - 2\pi \vec{g}_p)^2 + (\frac{mc}{\hbar})^2 - i\epsilon} \gamma_\mu U_i(\mathbf{W} - \mathbf{K}_0 - 2\pi \vec{g}_p + \mathbf{K}_0 + 2\pi \vec{g}_g) \right\} \vec{e}_{kp} \right. \\ \left. - \frac{(2[K_0 + 2\pi g_p])^{-\frac{1}{2}}}{\mathbf{K}_{g'}^2 - i\epsilon} \left\{ \bar{u}_j(\mathbf{W} - \mathbf{K}_0 - 2\pi \vec{g}_p + \mathbf{K}_0 + 2\pi \vec{g}_g) \gamma_\nu \frac{i\gamma_\alpha (\mathbf{W} - \mathbf{K}_0 - 2\pi \vec{g}_p)_\alpha - \frac{mc}{\hbar}}{(\mathbf{W} - \mathbf{K}_0 - 2\pi \vec{g}_p)^2 + (\frac{mc}{\hbar})^2 - i\epsilon} \gamma_\mu U_i(\mathbf{W}) \right\} \vec{e}_{kp'} \right], \quad \text{--- (5-3)}$$

M_{27} と M_{28} による結晶内電場は、

$$\delta E_2 \vec{e}_m = (2\pi)^{-4.5} \left[\frac{(2[K_0 + 2\pi g_x])^{-\frac{1}{2}}}{\mathbf{K}_y^2 - i\epsilon} \left\{ \bar{u}_j(\mathbf{X}) \gamma_\nu \frac{i\gamma_\alpha (\mathbf{X} - \mathbf{K}_0 - 2\pi \vec{g}_x)_\alpha - \frac{mc}{\hbar}}{(\mathbf{X} - \mathbf{K}_0 - 2\pi \vec{g}_x)^2 + (\frac{mc}{\hbar})^2 - i\epsilon} \gamma_\mu U_i(\mathbf{X} - \mathbf{K}_0 - 2\pi \vec{g}_x - \mathbf{K}_0 - 2\pi \vec{g}_y) \right\} \vec{e}_{kx} \right. \\ \left. + \frac{(2[K_0 + 2\pi g_x])^{-\frac{1}{2}}}{\mathbf{K}_{y'}^2 - i\epsilon} \left\{ \bar{u}_j(\mathbf{X} - \mathbf{K}_0 - 2\pi \vec{g}_x - \mathbf{K}_0 - 2\pi \vec{g}_y) \gamma_\nu \frac{i\gamma_\alpha (\mathbf{X} - \mathbf{K}_0 - 2\pi \vec{g}_x)_\alpha - \frac{mc}{\hbar}}{(\mathbf{X} - \mathbf{K}_0 - 2\pi \vec{g}_x)^2 + (\frac{mc}{\hbar})^2 - i\epsilon} \gamma_\mu U_i(\mathbf{X}) \right\} \vec{e}_{kx'} \right], \quad \text{--- (5-4)}$$

上式中 変数 \mathbf{W}, \mathbf{X} は Fig.5-3 中に見られるごとく電子のエネルギー-モーメントである、又 \vec{g}_p, \vec{g}_g は結晶の逆格子ベクトル、 $\mathbf{K}_x, \mathbf{K}_y$ は光子のエネルギー-モーメントであり、 $\vec{e}_{kp}, \vec{e}_{kx}$ は入射光子の偏光ベクトルである。 \vec{e}_m は結晶中の振動電場ベクトルの平均的方向で、以下の6節、(5-24)式で決まるものであり、 $\vec{e}_{kp'}, \vec{e}_{kx'}$ は輻射的に散乱される光子の偏光ベクトルで(5-3)、(5-4)のごとき過程で定まる。(5-3)、(5-4)式ではすでにBragg条件による光子のモーメントの選択的条件を採り入れているが、これは光子内線がLaueの共鳴関数(1913)のごとき、結晶内の干渉性を持つ結果と考える。

(5-3), (5-4)の如き原子内電子と光子の素相互作用に、すでに結晶体の総合された効果が現われる事は注目する必要がある。この過程で輻射された光子は結晶外へ回折X線として散乱されるが、若くは結晶内の多重散乱過程に取り込まれるが、それは全て衝突断面積を用いた確率過程の問題となる。

5-3 多色X線が生み出す共鳴状態

前節に記した如く、結晶内への光子の放出と結晶外への光子の輻射は(5-2)式右辺の3項に示される2次の擾動項で表わされる。Fig 5-4に示される本業に Vertex χ_2 で結晶中の電子は共鳴状態に在りて光子を結晶内へ放出する。Fig. 5-3に見られるように、この放出された光子のエネルギー・モメンタム、は(5-3), (5-4)式中で $\mathbf{K}_g, \mathbf{K}_g', \mathbf{K}_y, \mathbf{K}_y'$ と記され同じ伝播方向を示している。今入射X線のエネルギー・モメンタム \mathbf{K}_1 と \mathbf{K}_2 が近接した値を持つ場合 コントラクション公式(付録参照)に共鳴状態が現われる。光子のコントラクションの意味を明解にするために、(5-3)と(5-4)式を次のごとく単純化して表現する、

$$\delta \vec{\mathbf{E}}_2 \underset{M_{25}, M_{26}}{\sim} \frac{\vec{\mathbf{A}}}{\mathbf{K}_g^2 - i\epsilon}, \quad \delta \vec{\mathbf{E}}_2 \underset{M_{27}, M_{28}}{\sim} \frac{\vec{\mathbf{B}}}{\mathbf{K}_y^2 - i\epsilon} \quad \text{----(5-5)}$$

上式で $\vec{\mathbf{A}}, \vec{\mathbf{B}}$ などの3次元ベクトルは、(5-3), (5-4)式に見られるように、電子の共鳴過程で決る値を持ち結晶内で自己撞着的に決る偏光ベクトル方向を持っている。入射多色X線の干渉効果を見るために(5-5)式の2項を加え合せてみる、そして単純化のため $\vec{\mathbf{A}} = \vec{\mathbf{B}}$ と仮定すると、

$$\vec{f}(\mathbf{K}_g, \mathbf{K}_y) \equiv \sum_{M_{25}, M_{26}, M_{27}, M_{28}} \delta \vec{\mathbf{E}}_2 = \vec{\mathbf{A}} \left\{ \frac{1}{\mathbf{K}_g^2 - i\epsilon} + \frac{1}{\mathbf{K}_y^2 - i\epsilon} \right\} \quad \text{----(5-6)}$$

式中の分母に現われる微小小項 ϵ は物質系における吸収効果を示すものと思われるが、この評価はここでは行わない事とし、Molère (1939) などに従い微小なエネルギー損失に依るものと考えて置く、そして単純化のために一時、省略してみる。合成された干渉効果(5-6)式は、分母に在るエネルギー・モメンタム項を時空成分に分離してみると、 $(\mathbf{K}_y^2 = \mathbf{k}_y^2 - \omega_y^2/c^2)$ 次の結果を与える。

$$\vec{f} \cong \frac{\vec{A}}{\vec{K}_g^2 \left(1 - \frac{\omega_g^2}{\vec{K}_g^2 c^2}\right)} + \frac{\vec{A}}{\vec{K}_y^2 \left(1 - \frac{\omega_y^2}{\vec{K}_y^2 c^2}\right)} \quad \text{--- (5-6.1)}$$

更に, $\omega_g/\vec{K}_g c = 1 + \delta_g$, $\omega_y/\vec{K}_y c = 1 + \delta_y$ と置くと (5-6.1) 式は,

$$\vec{f} = \vec{A} \frac{\vec{K}_y^2 (2\delta_g + \delta_g^2) + \vec{K}_g^2 (2\delta_y + \delta_y^2)}{\vec{K}_g^2 \vec{K}_y^2 (2\delta_g + \delta_g^2) \cdot (2\delta_y + \delta_y^2)} \quad \text{---- (5-6.2)}$$

ここで $\omega_g/c = \vec{K}_g$ (真空中の光子の波動ベクトル) であり, 物質中の \vec{K}_g とは僅に異なるので $\delta_g \ll 1$ である。同様に $\delta_y \ll 1$ である。又更に, 簡単化のために $\delta_g = \delta_y = \delta$ と書くと, (5-6.2) 式は次式となる,

$$\vec{f}(\delta) = \frac{\vec{K}_g^2 + \vec{K}_y^2}{\vec{K}_g^2 \vec{K}_y^2 (2\delta + \delta^2)} \cdot \vec{A} \quad \text{---- (5-7)}$$

Fig. 5-5 は (5-7) 式の絶対値の関数形を示している。これは Terman (1947) の指摘した萬能共鳴曲線に類似している。今 δ 値が零に近づくと, (5-6) に於ける微小値 ϵ が効果を持って来るので Fig. 5-5 における極大値の値は $|2/\epsilon|$ の最大値を持つ。曲線の半価中は, (5-7) 式から $\vec{K}_g = \vec{K}_y$ と近似するとによって,

$$\delta_{1/2} = \epsilon / \vec{K}^2 \quad \text{---- (5-8)}$$

萬能共鳴曲線の理論と同様にして, 共鳴の Q 指数が定義される, 即ち

$$Q = \vec{K}^2 / 2\epsilon \quad \text{---- (5-9)}$$

(5-9) 式中に現われる ϵ は Molière に指摘されているように結晶中の電子の減衰振動にもとづくものと思われる。 \vec{K} ベクトルは結晶中の X 線の波動ベクトルで共鳴時には Bragg 条件に従うので, Q 値は結晶の状態と Bragg 条件に依存している。萬能共鳴の理論によれば Fig. 5-5 に示すとき共鳴状態が結晶中に成立している時には, 共鳴ピークの値に近いエネルギー・モータムを持つ入射光子の振動的エネルギーが一時共鳴場に蓄積され, 共鳴ピークの周波数を維持する

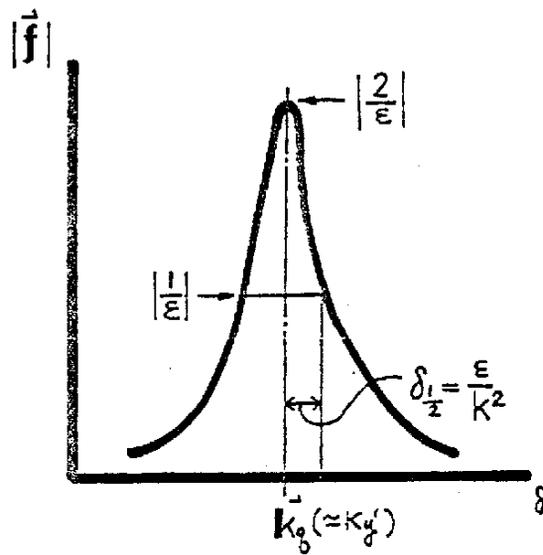


Fig5-5 Typical Shape of a Resonance State

δ shows relative deviation from exact resonance frequency indicated by K_0 . $\delta_{1/2}$ is equal to $(1/2) \cdot \text{FWHM}$ (Full Width of Half Maximum) of the resonance peak.

ために消費されると仮定する事と等価である。 Fig. 5-4 に示す Vertex α_1 において、結晶中の電子は共鳴状態に在り、結晶外へ光子を輻射している。この事実は、光子が Bragg 散乱にもづくものであると、共鳴した X 線は Vertex α_1 周辺の共鳴場から誘導的に輻射されると見做せる。誘導的に輻射される光子は、結晶内のみならず放射される光子内線の光子の波動ベクトルが、入射光子の波動ベクトルと近接している場合でも、これらの輻射及至は放射される光子の波動は入射のものとは物理的に独立であり、共鳴ピークに依存しては考えることが出来る。この等の二つの散乱の過程が Feynman 図 Fig. 5-3 の意味である。

5-4 動的構造因子

従来の X 線回折理論においては、構造因子は回折現象を調べる場合重要な働きをしている。

本節では構造因子が動的な付加項を含む形で量子場の理論により定義される。 Fig. 5-3 で M_{26} と記された局所的擾動電場内の電子のコントラクションは単位マトリクス C_e を用いて書きなおすと、

$$C_e \equiv -\frac{4}{4\pi^2 \hbar^2 + (\frac{mc}{\hbar})^2 - i\epsilon} U_j^*(\mathbf{K}\hbar) \left\{ 2\pi \hbar \alpha_1 + (\gamma_4 - E) \right\} U_i(\mathbf{K}_0) - \frac{4}{4\pi^2 \hbar^2 + (\frac{mc}{\hbar})^2 - i\epsilon} U_j^*(\mathbf{K}\hbar) U_i(\mathbf{K}_0). \quad (5-10)$$

Fig. 5-6 に示すとき一種類の平行な格子面内の多重反射を考えると、エネルギー・モントム $\mathbf{K}\hbar$ は \mathbf{K}_0 で置き代えることが出来る。又添字 i と j が等しい時は、(5-10) 式中の α_2 項は結晶中の或る Vertex における青銅的電荷密度に対応する。結晶中における光子と Vertex の分布が一様であると仮定すると、(5-10) の α_2 項を加算した結果は、(5-11) 式に見られるように、伝統的な結晶構造因子に比例した形を持つ。今、三次元空間でモントムベクトル \mathbf{K} が格子ベクトル \mathbf{H} に平行であると、 V_a を単位格子の体積とすると、構造因子 F_{hkl} は次のごとくである、

$$U^*(\mathbf{K}) U(\mathbf{K}) = \int_{V_a} U^*(\mathbf{r}) U(\mathbf{r}) e^{2\pi i \mathbf{K}\mathbf{r}} d^3\mathbf{r} = \int_{V_a} \rho(\mathbf{r}) e^{2\pi i \mathbf{K}\mathbf{r}} d^3\mathbf{r} = \rho(\mathbf{K}) \equiv \frac{F_{hkl}}{V_a} \quad (5-11)$$

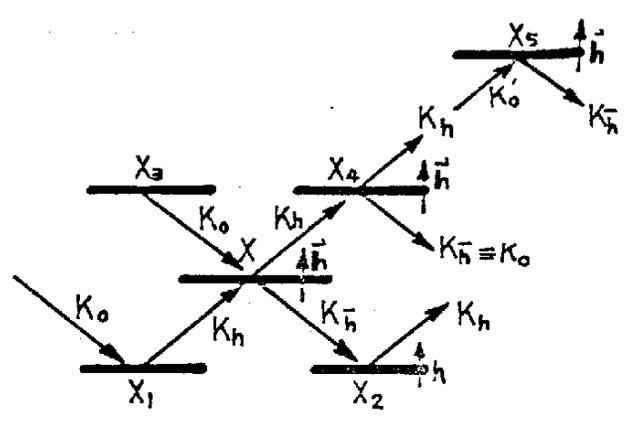


Fig5-6 The State of Multiple Reflection

\vec{h} is corresponded to the reciprocal vector of the reflecting plane
 \mathbf{K}_0 is the incidence, \mathbf{K}_h is the diffracted but it again
 becomes as an incidence.

(5-10)式の第一項は Dirac 行列の奇及び偶成分を含んでいるので (Scadron 1979), この項は電子→電子、又は正孔→正孔の形の励起関係を偶演算子が与え、電子→正孔、或は正孔→電子の形の励起を奇演算子が与える表現となっている。従って、(5-10)式の第一項は動的な電荷分布に対応し、通常の構造因子に対応する第二項の付加項になっている。(5-10)式で示される2次の擾動項を結晶の単位格子について積分すれば、動的な電荷密度が得られる、すなわち、

$$S(\mathbf{K}) \equiv \sum_{ij} \bar{U}_j(\mathbf{K}) \gamma_\nu \left\{ \frac{i\gamma_\alpha \mathbf{P}_\alpha - \frac{mc}{\hbar}}{\mathbf{P}_\alpha^2 + \left(\frac{mc}{\hbar}\right)^2 - i\epsilon} \right\} \gamma_\mu U_i(\mathbf{K}). \quad \text{--- (5-12)}$$

上式で \mathbf{P}_α は電子のコトラクション中の電子のエネルギー・モーメントであり、 $\gamma_\alpha \mathbf{P}_\alpha$ は $\sum_{\alpha=1}^4 \gamma_\alpha \mathbf{P}_\alpha$ の意味である。従って動的構造因子は次式で与えられる、

$$\bar{F}^d(\mathbf{K}) \equiv \int_{\text{unit cell}} S(\mathbf{K}) dV \quad \text{--- (5-13)}$$

5-5 輻射 X 線の分散

X線の輻射が Fig.5-4の Vertex α_ν で生じている事実と関連し、輻射 X 線の分散を論じる。即ち入射 X 線と散乱輻射 X 線の関係を論じる。二次散乱光子の共鳴ピーク周波数は次の如く決められる。入射光子の偏光ベクトル \vec{e}_{Kx} と \vec{e}_{Kp} 及び回折波の偏光ベクトル $\vec{e}_{Kx'}$ と $\vec{e}_{Kp'}$ はそれぞれ Bragg 反射の入射面に対し垂直 (e_\perp) 又は平行 (e_\parallel) であるとする。波動ベクトル \vec{K}_x の電場の振中は、式(5-2)及び(5-3)に見られるごとくモーメント表示で $E_{Kx} = i\omega/\sqrt{2K_x}$ となる。入射光子の偏光の方向は確率的なもので、任意の偏光状態は両者の和、 $\vec{E}_{Kx} = (\vec{E}_{x\parallel} + \vec{E}_{x\perp})$ で表現される。Bragg 条件 $\vec{K}_h = \vec{K}_0 + 2\pi\vec{g}_h$ 及び(5-3), (5-4)式を用いると、Fig.5-3の如く、 M_{25} 及び M_{26} の組合せで局所的な電場が形成される、即ち：

$$\delta E_2 \cdot \vec{e}_m = (2\pi)^{-4.5} \left\{ \frac{(\vec{E}_{PL} + \vec{E}_{P'l})}{\vec{K}_g^2 - \frac{\omega_g^2}{c^2} - i\epsilon} S(\mathbf{P}) - \frac{(\vec{E}_{P'L} + \vec{E}_{P'l'})}{\vec{K}_{g'}^2 - \frac{\omega_{g'}^2}{c^2} - i\epsilon} S(\mathbf{P}') \right\} \quad \text{--- (5-14)}$$

右辺の括弧内、第1項は入射光子、第2項は散乱光子(734頁)に対応、更に M_{27}, M_{28} の組合せに対して、

$$-\delta E_2 \cdot \vec{e}_m = (2\pi)^{-4.5} \left\{ \frac{(\vec{E}_{xL} + \vec{E}_{x'l})}{\vec{K}_g^2 - \frac{\omega_g^2}{c^2} - i\epsilon} S(\mathbf{X}) - \frac{(\vec{E}_{x'L} + \vec{E}_{x'l'})}{\vec{K}_{g'}^2 - \frac{\omega_{g'}^2}{c^2} - i\epsilon} S(\mathbf{X}') \right\}, \quad \text{--- (5-15)}$$

上式の中の $S(\mathbf{P}), S(\mathbf{P}'), S(\mathbf{X})$ 及び $S(\mathbf{X}')$ などは (5-12) 式に見られる動的電荷密度である。

一例として入射面に垂直な偏光を持つ光子の波が Vertex に於て相互作用を生じた場合を考察

する。簡単化のために特別な場合とし、(5-14)及び(5-15)の反応が結晶全体で生じたとする。

Fig. 5-3 における入射波に属する電場の振中 \vec{E}_x と \vec{E}_p などは \vec{E}_0 と読む、添字 "0" は入射を意味する。同様に $\vec{E}_{x'}$ と $\vec{E}_{p'}$ は回折波電場振中 \vec{E}_h と読む。又、Fig. 5-3 の $M_{25}, 26, 27, 28$ にか

ける光子内線の伝播の向きをとり之を $K_{g'} = K_g, K_g = K_g$ とおくことが出来る。今、瞬間的に

弾性散乱が生じ、結果として結晶内に何等残存電場の擾動の跡を残さなかったとすると、(5-14)

と(5-15)の右は消滅するであろう。従つて、又(5-14), (5-15) 各々も無視し得ると仮定する。この場合

には回折波と入射波の光子の偏光方向は一致する、しかし一般には偏光方向は古典論のごとく

一致しないと見做せる。(5-14), (5-15) 式で ϵ を無視して整理すると、 $\omega_g = \omega_{g'} = \omega_0$,

$|K_g| = K_0, |K_{g'}| = K_0$ などと置いて、垂直成分のみについて次の連立式が得られる:

$$\left. \begin{aligned} \frac{(K_0 + \omega_0/c) S(\mathbf{P}) \cdot \vec{E}_0}{2K_0} - S(\mathbf{P}') \vec{E}_h &= 0 \\ S(\mathbf{X}) \vec{E}_0 - \frac{(K_0 + \omega_0/c) S(\mathbf{X}') \vec{E}_h}{2K_0} &= 0 \end{aligned} \right\} \quad \text{--- (5-16)}$$

(5-16) 式は従来の古典的 X 線回折理論に於ける分散方程式に似ているが、統計的には、特殊

な、局所的な場合であるので、直接古典論の分散方程式と比較することは出来ない。弾性散乱におけ

る古典論の場合と同様な、X 線の入射波及び回折波振中の間の関係はすべての物理的に可能な

擾動項を加算し、= 波近似の場合には次の永年方程式から得られる、

$$\left\langle \left| \begin{array}{cc} \frac{\sum S_p}{K_0} & -S(P') \\ S(X) & -\frac{\sum S_{x'}}{K_0} \end{array} \right| \right\rangle = 0 \quad \text{---(5-17)}$$

ここで $\sum S_p = \frac{1}{2}(K_0' + \omega_0/c)S(P)$, $\sum S_{x'} = \frac{1}{2}(K_0' + \omega_0/c)S(X')$ などを意味する。こからの計

算はすべて運動量空間で計算にあるので実空間の量になおすにはフーリエ変換を必要とする, 又波動ベクトルの

大きさは前節で論じたごとく, 光子内線で生じる共鳴振動数とその分布中で決り, その中心周波数は

(5-17)式で求まる K_0 から求まる, すなわち $f_0 = CK_0/2\pi$, c は光速である。

5-6 輻射 X 線の電場における偏光の混合

古典的分散方程式において Moliere (1939) は一般化分極率をテンソルの形で示した。テンソルの性質

を用い, Moliere は同時に励起される独立な二つの楕円偏光成分間の干渉の存在を示した。しかし楕円偏光の

生ずる理由についての詳細な研究はその後行われていない。偏光方向の回転を論ずるには, (5-2)式に

見られる 2 次の擾動項を詳細に検討する必要がある。既に論じたように, 2 次の擾動項の一般項は

Fig. 5-3 に示した物理過程の一つであり, 次のごとくである:

$$\overbrace{A_{\mu}^+ A_{\lambda}^-}^{C_1} \overbrace{\Psi_1^+ \gamma_{\mu} \Psi_1^- \Psi_2^+ \gamma_{\mu_2} \Psi_2^-}^{C_2} A_{\mu_2}^- \quad , \quad \text{---(5-18)}$$

ここで C_1 は光子のコントラクション, C_2 は電子のコントラクションである。(5-18)式中の γ 行列の位置は干渉相

相互作用の生じている Vertex の位置に対応している。又, (5-18)式の右から左へ向けて時間が経過して行く。

(5-18)式を時間の経過に応じて読めば,

即ち Vertex μ_2 に光子と電子が入射し, 電子の共鳴状態 C_2 が生じ, 再び Vertex μ_1 にて電子が放出され, 光子の共鳴状態が生ずることを示している。運動量表示における演算子 A_{λ}^+ と Ψ_{λ}^- の

関数的表現は次のごとくである:

$$A_{\lambda}^+ = \frac{1}{\sqrt{(2\pi)^3}} \frac{a_{\lambda}^*(\vec{k})}{\sqrt{2k}} \vec{e}_k \quad ; \quad \Psi_{\lambda}^-(\vec{P}) = \frac{1}{\sqrt{(2\pi)^3}} u_{\lambda}(\vec{P}) a_{\lambda}(\vec{P}) \quad \text{---(5-19)}$$

これ等の演算子は標準的な手法 (Scadron 1979) によって Feynman グラフと対応づけられる, Fig. 5-4.

代表的例を Fig. 5-3 から引用する次のごとくである;

$$M_{26} \equiv \frac{-(2\pi)^{-4.5}}{(\mathbf{K}_{g1}^2 - i\epsilon)\sqrt{2K_p}} \bar{u}_j(\mathbf{W} - \mathbf{K}_p' + \mathbf{K}_g') \gamma_\nu \frac{i\delta_\alpha(\mathbf{W} - \mathbf{K}_p')_\alpha - \frac{mc}{\hbar}}{(\mathbf{W} - \mathbf{K}_p')^2 + (\frac{mc}{\hbar})^2 - i\epsilon} \gamma_\mu u_i(\mathbf{W}) \vec{e}_{kp'} \quad (5-20)$$

Bragg 散乱が生じている時. 変数 $\mathbf{K}_g, \mathbf{K}_p$ は次の値を持つと考えられる, δ を入射波に " \hbar " を固折波と

$$\text{して, } \mathbf{K}_g' = \mathbf{k}_0, \quad \mathbf{K}_p' = \mathbf{k}_0 + 2\pi\vec{h} = \mathbf{k}_h \quad (5-21)$$

ここで簡単化のために \vec{h} は h_1 成分のみを考える. すなわち $\vec{h} = (h_1, 0, 0)$ と置き, 更に $\mathbf{W} \equiv \mathbf{k}_0$ と

する. γ マトリックスの性質を用いると, (5-20) 式中の電子のコントラクション (Ce と略記) は次のごとくである,

$$Ce = \frac{4}{4\pi^2 h_1^2 + (\frac{mc}{\hbar})^2 - i\epsilon} u_j^*(\mathbf{K}_h) \left\{ 2\pi h_1 \alpha_1 + \gamma_4 \right\} u_i(\mathbf{k}_0) \vec{e}_{kp} \quad (5-22)$$

ここで $\alpha_1 = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}$ は典型的な奇演算子で, $\gamma_4 = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}$ は偶演算子である (Scadron 1979).

従って, (5-20) 式の一般的表現は,

$$\vec{M}_{2i} = u_k^*(\mathbf{P}) \Gamma u_j(\mathbf{P}') \vec{e}_i \quad (5-23)$$

ここで Γ は複合された γ 行列で, \vec{e}_i は i 番目の光子の偏光方向の単位ベクトルである. 従って,

2次擾動による平均的電場は, 平均偏光方向ベクトル \vec{e}_m を定義することにより,

$$\begin{aligned} \langle E_2 \rangle \vec{e}_m &= \sum_i M_{2i} = \sum_{i,j,k} (u_k^*(\mathbf{P}) \Gamma u_j(\mathbf{P}'))_i \vec{e}_i = \sum_i S_i(\mathbf{K}) \vec{e}_i = \begin{pmatrix} S_1 & S_2 & 0 \\ 0 & \dots & S_n \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \vec{e}_1 \\ \vec{e}_2 \\ \vdots \\ \vec{e}_n \end{pmatrix} \\ &\equiv S_s \cdot \vec{e}_i \end{aligned} \quad (5-24)$$

の如くに表現される. 従って, 結晶内の平均的擾動電場は多重反射の統計的和であると考える

ことが出来る. 個々の擾動電場が安定な共鳴場で構成されていると考えられるので, その合計である (5-24)

式で表現される結晶内擾動電場は安定な「ハズレ車」の如き働きをおもむく推定される. 従って (5-3) 或

は (5-4) 式中に現われる個々の固折波は (5-24) に示す $\langle E_2 \rangle \vec{e}_m$ が, 安定を保ち得る様な統計的

確率過程によって決まるものと考えられる。詳細は未解決であるが (5-24)式に示す行列 S_2 或は動的構造因子の中にそのプロセスがあるものと推定される。

5-7 結 語

結晶中のX線回折現象が相対論的量子電磁場の枠の中で論ぜられた。その結果結晶中における白色X線のBragg散乱は共鳴的性質を持っており、電子と光子の二段階のコントラクションによって説明された。結晶中の平均的擾動電場が論ぜられた。その結果X線偏光方向の回転する現象が、原理的に説明され、その基本的原因はDiracのY行列の性質を持つ動的構造因子の統計的性質に帰せられた。近接したエネルギー・モメンタを持つ2つの^{入射}光子がBragg散乱も行い、その結果入射光子と近接してはいるが独立の2つの回折光子を生み出す過程が示された。この現象は波動力学的取扱における白色X線のBragg散乱源のコヒーレンス現象に対応している。

5-8 付録 (相対論的量子電磁力学の概要)

1) Lagrangian density.

古典力学、乃至は非相対論的表現では、力学方程式の出発点に Hamiltonian を用いる。しかしこの方法は時間軸をすべての力学系に対し共通に採用するので、ローレンツ変換に対して力学方程式が変わってしまうことになる。そこで、ローレンツ変換不変性を要請することから、Lagrangian を基本方程式の出発点とする力学量を選ぶ。

電子と光子の系の Lagrangian 密度は次式で与えられる。

$$L = L_r + L_e + L_i, \quad \text{--- (A5-1)}$$

ここで輻射場の Lagrangian $L_r = \frac{1}{4} \left(\frac{\partial A_\nu}{\partial x_\mu} - \frac{\partial A_\mu}{\partial x_\nu} \right)^2 - \frac{1}{2} \left(\frac{\partial A_\mu}{\partial x_\mu} \right)^2$ を用いる。 L_r から Maxwell 方程式 $(\frac{\partial^2}{\partial t^2} - \nabla^2) A_\mu = -\frac{1}{c} j_\mu$ が求まる。 $\mu=1, 2, 3$ は空間成分、 $\mu=4$ は時間成分である。 A_μ は 4次元電磁ポテンシャルであり A_4 はスカラーポテンシャルを意味し $A_4 = \phi$ と書ける。時間座標 $x_4 = ict$ である。

電子場の Lagrangian $L_e = -\bar{\psi} \left(\gamma_\mu \frac{\partial}{\partial x_\mu} + \frac{mc}{\hbar} \right) \psi$ が用いられる。ここで Dirac の電子場の方程式 $(\gamma_\mu \frac{\partial}{\partial x_\mu} + \frac{mc}{\hbar}) \psi = 0$ が導かれる。 $\bar{\psi} = \psi^* \gamma_4$ である。 γ_μ は Dirac の γ 行列 (4行・4列) である。 j_μ は 4次元電流密度ベクトルで、 $j_4 = ic\rho$ である。 ψ は電子場の演算子である。

L_i は相互作用を示す Lagrangian 密度で、 $L_i = -j A_\mu = -iec \bar{\psi}(x) \gamma_\mu \psi(x)$ で表わされる。

2) 光子のベクトルポテンシャルの正規形式

(A5-1) に用いられるベクトルポテンシャルはハイゼンベルグ表示で次の形式で表現される、

$$A_\lambda(x_\mu) = \frac{1}{\sqrt{(2\pi)^3}} \int \frac{d^3k}{\sqrt{2|k|}} (a_\lambda(\vec{k}) e^{iK_\mu x_\mu} + a_\lambda^*(\vec{k}) e^{-iK_\mu x_\mu}) \quad \text{--- (A5-2)}$$

K_μ は光子のエネルギー-エ-メントで、空間成分 K_μ ($\mu=1, 2, 3$) 及び時間成分 $K_4 = ik = i|\vec{k}| = i\frac{\omega}{c} = iE/\hbar c$

A_λ のフーリエ展開係数 a_λ , a_μ^* は光子の消滅及び生成演算子であり、次の交換関係を満足する、

$$[a_\lambda(\vec{k}), a_\mu^*(\vec{k}')] = \delta_{\lambda\mu} \cdot \delta(\vec{k}, \vec{k}') \quad \text{--- (A5-3)}$$

3) 電子の場の演習子の正準形式

(A5-1) に用いられる電子場はハゼンベルグ形式で次の形式で表わされる。

$$\Psi_\alpha(x_\mu) = \frac{1}{\sqrt{(2\pi)^3}} \int d^3\vec{p} \sum_{r=1,2} \left\{ a^{(r)}(\vec{p}) u_\alpha^{(r)} e^{i\vec{p}\cdot\vec{x}_\mu} + b^{(r)*}(\vec{p}) v_\alpha^{(r)*} e^{-i\vec{p}\cdot\vec{x}_\mu} \right\} \quad \text{--- (A5-4)}$$

ここで $\mathbf{P}_\mu = (\vec{p}, iE/c)$ は電子の4次元エネルギー・モーメントであり、 \vec{p} は空間成分で、時間成分は

$iE/c = i\sqrt{\vec{p}^2 + m^2 c^2}$ である。 $u_\alpha^{(r)}$ 及び $v_\alpha^{(r)*}$ は電子及び陽子に対する Dirac 方程式の固有解

であり、*印は複素共役を示す。 $r=1$ と 2 は、スピンの上向きと下向きに対応している。 Ψ_α のフーリエ係

数 $a^{(r)}(\vec{p})$ と $a^{(s)*}(\vec{p})$ は電子の消滅及び生成演算子を示し、 $b^{(r)}(\vec{p})$ と $b^{(s)*}(\vec{p})$ は陽子の消滅、

生成演算子を表わしている。それぞれ 次の反交換関係を満足する性質を持っている。

$$\left\{ a^{(r)}(\vec{p}), a^{(s)*}(\vec{p}') \right\} = \left\{ b^{(r)}(\vec{p}), b^{(s)*}(\vec{p}') \right\} = \delta_{rs} \cdot \delta(\vec{p}, \vec{p}') \quad \text{--- (A5-5)}$$

4) 状態ベクトル

系の統計的存在状態を示す状態ベクトル $\Psi[\sigma]$ は相対論的 Schrödinger 方程式で与え

られていて、

$$i \frac{\delta \Psi[\sigma]}{\delta \sigma(x)} = H'(x) \Psi[\sigma] \quad \text{--- (A5-6)}$$

変数 σ は4次元空間を示している。又 x は4次元座標である。 $H'(x)$ は相互作用ハミルトニアンで

あり、4次元空間の単位変位当りの状態量の変化は相互作用エネルギーに比例する(と)簡単な意味

を示している。そこで $H'(x)$ は次の形式を持つスカラー量である。

$$H'(x) = -L_i = j_\mu(x) A_\mu(x) \quad \text{及び} \quad j_\mu = -ie c \bar{\Psi}(x) \gamma_\mu \Psi(x) \quad \text{--- (A5-7)}$$

任意の時・空における状態ベクトルは、空間体積素 $d^4x = d^3x \cdot dt$ を用いて、

$$\Psi[\sigma] = \sum_{n=0}^{\infty} \left(\frac{1}{i\hbar}\right)^n \int_{-\infty}^{\sigma} d^4x_1 \int_{-\infty}^{\sigma_1} d^4x_2 \cdots \int_{-\infty}^{\sigma_{n-1}} d^4x_n H(x_1) \cdots H(x_n) \Psi[-\infty], \quad \text{--- (A5-8)}$$

ここで x_1 から x_n は Vertex の時空座標を示している。各 Vertex において過去から σ までの相互作用の効果を重ね合わせて現在の状態が決るとを示している。通常 $\Psi[\sigma]$ を現かな型に書かるとはしない。ユイグ=変換で、簡単

な Fock 形式に移すからである。(Fock 1932) 今、 m 個の電子と m 個の陽電子、 q 個の光子が存在する系

では状態ベクトルの Fock 形式は次のごとくである、

$$\vec{E}(m, m, q) = \frac{1}{\sqrt{m! m! q!}} b^{(s_1)*} \cdots b^{(s_m)*} a^{(p_1)*} \cdots a^{(p_m)*} A_{\mu_1}^*(k_1) \cdots A_{\mu_q}^*(k_q) \vec{E}_0 \quad \text{--- (A5-9)}$$

ここで、 \vec{E}_0 は真空ベクトルである。この Fock 形式も完全直交系を成すことが分っており、これを基底と見 (A5-2)

、(A5-3) などの場の量を Fourier 展開すると、場の量 A_{μ} 、 ψ などと (A5-3)、(A5-5) と同じ

形の交換関係を満たす場の演算子であることが解る。電磁場、電子場が変数と同じようにまとめ扱える事を意味している。

5) S 行列

散乱の S 行列は (A5-8) 式で $\sigma \rightarrow +\infty$ にするにより得られる。数学的には $-\infty, +\infty$ という表現を

使っているが、永遠の過去から無窮の未来を指すに (A5-2)、現実感覚が反くはなるが、物理的には相互作用を境

にして、相互作用の影響する範囲から見て充分過去と、相互作用の結果達した定常状態に至る未来、という程度に

考えれば、 $+\infty$ の時点を観測者の立っている時点とするとも近似的には許されるであろう。

S 行列の展開は次に示すとき階段関数を用いて簡単に行うことが出来る、すなわち

$$S = \sum_{n=0}^{\infty} \left(\frac{1}{i\hbar}\right)^n \frac{1}{n!} \int_{-\infty}^{\infty} d^4x_1 \cdots \int_{-\infty}^{\infty} d^4x_n \sum_n \left\{ H(x_1) \cdots H(x_n) \right\} \eta(\sigma_1, \sigma_2) \cdots \eta(\sigma_{n-1}, \sigma_n), \quad \text{--- (A5-10)}$$

階段関数は次の意味を持っている $\eta(\sigma, \sigma') = \begin{cases} 1: \sigma' \text{ が } \sigma \text{ より過去} \\ 0: \sigma' \text{ が } \sigma \text{ より未来} \end{cases}$, 又式中で $\sum \{ \dots \}$ の

部分は、相互作用項のオートの順列の組合せを意味する。(A5-10)の現実の計算はDysonの

時間順序演算子を用いた形になる(Dyson 1949), すなわち.

$$S = \sum_{n=0}^{\infty} \left(\frac{1}{i\hbar} \right)^n \frac{1}{n!} \int_{-\infty}^{\infty} d^4x_1 \dots \int_{-\infty}^{\infty} d^4x_n T(H(x_1), H(x_2), \dots, H(x_n)). \quad \dots (A5-11)$$

(A5-11)の現実の計算は、Wickの定理(1950)を用いて、項を整理し、Feynman & Dyson によるグラフ

イテラティブ方法(Feynman & Dyson 1949)で簡単に実行出来る。この展開を行う中で、各積分項は、

δ -積と呼ばれる項と、コントラクション項との積で出来た項の集まりに整理出来る(Wick 1950)。

δ -積を持つ項は真空状態で積分すれば消滅する、これは干渉の結果消えること等価である。一方、

コントラクションは真空状態で積分しても消えない。

6) コントラクション

コントラクションは消滅及び生成演算子を用いた積分の組合せで、物理的には与えられた場の擾動に
対するインパルス応答とか、信号の伝達関数であるとか、本文におけるように場の共鳴といった解釈が成される。数学
的には、ローレンツ変換に対して不変な共変グリーン関数となる。そのグリーン関数は次のごとく定義される、

即ち

$$[A_\mu(x), B_\nu(x')] \equiv \langle 0 | T(A_\mu(x), B_\nu(x')) | 0 \rangle. \quad \dots (A5-12)$$

(A5-12)式は運動量表示の光子の演算子を用いて表わしたもので、座標形式で書くと、

$$[A_\mu(x), B_\nu(x')] = \frac{1}{2} \delta_{\mu\nu} D_F(x-x') = - \frac{\delta_{\mu\nu}}{(2\pi)^4} \int_{-\infty}^{\infty} e^{iK_\mu(x-x'_\mu)} \frac{i}{K_\mu^2 - i\epsilon} d^4K \quad \dots (A5-13)$$

又電子の演算子で書くと次のようになる。

$$[\Psi_\alpha(x), \bar{\Psi}_\beta(x')] = \frac{1}{2} \int_F (x-x') \delta_{\alpha\beta} = + \frac{\delta_{\alpha\beta}}{(2\pi)^4} \int_{-\infty}^{\infty} e^{iK_\mu(x-x'_\mu)} \frac{\gamma_\lambda K_\lambda + i \frac{m c}{\hbar}}{K_\mu^2 + (\frac{m c}{\hbar})^2 - i\epsilon} d^4K \quad \dots (A5-14)$$

ここで $D_F(x)$, $S_F(x)$ は共変伝関数と言われている。

7) Dirac 方程式のエネルギー軸移動における保存性

Dirac の方程式は $\frac{1}{c} \frac{\partial \Psi}{\partial t} + \sum_{k=1}^3 \alpha_k \frac{\partial \Psi}{\partial x_k} + i \frac{m c}{\hbar} \beta \Psi = 0$, 但し α_k, β は Dirac の matrix .

今 $\Psi = \Phi(r) \Xi(t)$ とおくと

$$\frac{\Phi(r)}{c} \frac{\partial \Xi(t)}{\partial t} + \Phi(r) \sum_K \alpha_k \frac{\partial \Phi}{\partial x_k} + i \frac{m c}{\hbar} \beta \Phi \Xi = 0$$

$$\therefore \frac{1}{c \Phi(t)} \frac{\partial \Phi}{\partial t} + \frac{1}{\Phi(r)} \sum_K \alpha_k \frac{\partial \Phi}{\partial x_k} + i \frac{m c}{\hbar} \beta = 0$$

今 K を分離定数とすれば

$$K C \Phi(t) = \frac{\partial \Phi(t)}{\partial t} \quad \dots (i), \quad (\sum \alpha_k \frac{\partial}{\partial x_k} + i \frac{m c}{\hbar} \beta + K) \Phi(r) = 0 \quad \dots (ii)$$

i) より $\Xi(t) = \exp\{K C t\} + \text{const}$, 簡単のため $\text{const} = 0$ とおくと $K = \frac{E}{c \hbar}$ とし $\Xi = e^{\frac{i}{\hbar} E t}$ と得る。

今 $E = E_F$ とおくと $\Phi_F = e^{\frac{i}{\hbar} E_F t}$ と得る。次に $\Phi = \Phi_F \Xi_r$ とおくと

$$i) \text{式から } K C (\Phi_F \cdot \Xi_r) = \frac{i E_F}{\hbar} \Phi_F \Xi_r + \Phi_F \frac{\partial \Xi_r}{\partial t} \quad \therefore K C \Xi_r - \frac{i}{\hbar} E_F \Xi_r = \frac{\partial \Xi_r}{\partial t}$$

$K = \frac{E \cdot i}{c \hbar}$ とおくと $\frac{i}{\hbar} (E - E_F) \Xi_r = \frac{\partial \Xi_r}{\partial t}$ と得る。よって $\Xi_r = e^{\frac{i}{\hbar} E_r t}$, $E_r = E - E_F$ と置く。

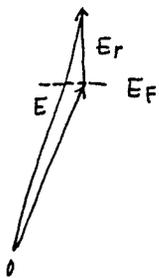
$$K' = \frac{E_r \cdot i}{c \hbar} \text{ とおくと, } K' C \Phi_r(t) = \frac{\partial \Phi_r(t)}{\partial t} \text{ と得られる。}$$

従って、エネルギーの原点を平行移動しても Dirac 方程式の形は不変であり、単に解に位相項

が加わることになり、原点をフェルミレベルとすれば伝動関数:

$$\Psi = \Phi(r) \Xi_r(t)$$

も Dirac 方程式を満足することがわかる。



第 6 章 新 X 線球面波理論

6-1 緒 言

MLD 法は白色 X 線を用いた結像法であるが、或る反射面の MLD 像中の X 線の波長分布は Bragg 条件にもとづく規則的变化をしているので、局部的には単色であると言える。前章で論じたごとく、局部的に波長が近接している場合には共鳴的な重ね合せの干渉性を期待することが出来る。従って、古典的方法を展開するに際して、第四章で論じたごとく、先づ単色 X 線による回折 X 線強度の検討を行う。 従来単色 X 線による X 線回折強度計算のための動力学的方法は多数報告されている。〔Hildebrandt (1959), Penning & Polder (1961, '64), Bonse (1964), Kambe (1965, 1968), Takagi (1962, '69), Balibar (1967, '69), Authier et al. (1968), Taupin (1964), Ohtsuki (1966, '67), Kuriyama (1967, '68, '69, '70)〕 これ等の数ある理論的オ法の中で散乱二次波の波面が球面である代表的理論は Kato (1961, 1963) のオ法である。Kato の理論は入射が平面波で二次散乱波が球面波として扱われた Born の散乱理論 (1926) に範がとられていた。二次散乱波は、即ち回折 X 線は理想結晶中で Bragg 反射が生じている条件下で、結晶中の直交する部分波の関数列により位相空間で Fourier 展開された。計算の展開は鞍点法による近似計算が行われ、球面波が部分平面波により漸近的に級数展開された。その結果位相空間における等位相面は円筒形となり、X 線の入射面近傍では球面波と言ふより円筒波に近づいた。もう一つの代表的理論は Takagi の理論 (1962, 1969) であった。これは球面波とは断っていないが、波面の形は自由度があって応用性が広く、準平面波理論と称せられている。Takagi のオ法は Maxwell の波動方程式をわざわざ歪んだ結晶の空間に適用し、Riemann のオ法で積分した。又、その中で結晶内の X 線波動の電気偏位ベクトルと電気分極は結晶中の場所の関数である振中を持つ準平面波の組で Fourier 展開されていた。この関数振中は複素数であるので、局部的波動ベクトルも場所の関数で

ある。しかし Takagi の方法では、Laue 流の分散面思考にもとづく部分波の波動ベクトルの決定は行わず、対称 Bragg 反射における平均的波動ベクトルを与えるだけし、場所の関数としての波動ベクトルの擾動項は複素振動の中へ陰に含む形を採った。反面、波の明解な位相関係は Riemann 法による積分の過程で失われている。Takagi 理論のもう一つの特徴は 2 階の双曲型偏微分方程式で示される独立な二つの波動の解のうち片一方の波だけを表現している事である。実験的観測結果を表現する目的には、一つの部分波による現象論的方法でも充分であるように思われたが、一般性が欠けるために楕円偏光の問題を扱う事は困難であると思われた。もう一つの Takagi の方法の問題は、ゆづかに歪んだ結晶モデルの上に展開されている理論形式であり、弾性限度を超える様な歪度には歪んだ結晶までは適用出来ない事である。理想結晶に近い状況を論ずるために構築されて来た従来の古典理論を、いわゆるモザイク結晶に近い状況にまで応用する事は無理であるが、より広い応用性の理論が望まれる理由も有る。MLD 法の典型的な特徴は、同時反射による、様々な歪条件を持つ結晶試料の立体観察を行う事である。この様な状況に適用出来る新球面波理論を Takagi の理論の土台の上に構築する事を本章で論じた。

6-2 節では、引続く各節の理解を深めるために、Takagi 理論の概略を記した。

6-3 節では、任意の歪条件に適用出来る Riemann 関数を逐次近似法で展開した。

6-4 節では、新球面波 X 線回折理論が Maxwell の波動方程式を基礎に展開された。展開の方法は一種の定数変化法であり、振動補正関数と位相関数を導入した。一般にこの位相関数は Eikonal と呼ばれている。

6-5 節では逐次近似法により振動補正関数が決定された。

6-6 節では歪んだ結晶中における波動ベクトルを決定するために、透過波の Eikonal 関数が積分された。その結果は、実、虚位相空間の X 線の波面が楕円面である事を示している。

6-7節では X線球面波の波動関数と波動ベクトルの導出が論じられた。従来座標の原点に在ると信ぜられていた特異点が、合成波の発散点を考察する事により取除かれた。

6-8節では、従来の永年方程式にもとづく双曲面型分散面に代り、Eikonal (関数) にもとづく分散面が導入された。波の分散関係は、結晶内の X線波が Bragg 条件近傍を示す共鳴性により、Eikonal が Lane 関数近くで変形する事により与えられる事を示した。

6-9節では、境界条件に関する一考察が示された。Takagi 理論が第一近似部分に用いられているため入射側及び出射側の結晶表面で電気ベクトルの接線連続性の境界条件が、その平均ベクトルに対し用いられた。したがってこの接線連続性境界条件は波動ベクトルの振動部分には適用されていない。振動部分の決定は Eikonal を微分する事により与えられた。

6-2 結晶中の動力学的波動方程式

歪んだ結晶内に於ても次に示す部分波展開による方法によれば周期関数による Fourier 展開が結晶内波動場における電気偏位ベクトル \vec{D} 並びに結晶の分極率 χ に対し与えられ得る事が示された (Takagi 1962, '69), 時間的に変化する部分は別として,

$$\vec{D}(\vec{r}) = \sum_h \vec{D}_h(\vec{r}) \exp[-i2\pi\{\vec{K}_h \cdot \vec{r} - \vec{H}\vec{U}(\vec{r})\}], \quad \text{---(6-1a)}$$

$$\chi(\vec{r}) = \chi_{\text{perfect}}(\vec{r} - \vec{U}(\vec{r})) = \sum_h \chi_h \exp[-i2\pi\{\vec{H}(\vec{r} - \vec{U}(\vec{r}))\}]. \quad \text{---(6-1b)}$$

これらの表現を Maxwell の波動方程式に代入し、Takagi の X線の波動方程式が次の如く導かれた:

$$(\vec{s}_h \cdot \vec{g} \text{ grad}) \vec{D}_h = i2\pi K \beta'_h \vec{D}_h - i2\pi K \sum_{g \neq h} \chi_{h-g} [\vec{D}_g]_h. \quad \text{---(6-2a)}$$

(6-2a) 式の適用範囲は、式導出の過程から定まり、(6-1a, b) のごとき展開の周期関数の平均的

空間波長を Λ , X線の波動ベクトルを K , 分極率のフーリエ係数(結晶の h 面)と χ_h とした時, $\Lambda \gg \frac{1}{K\chi_h}$ の成り立つ空間波長範囲で (6-1a, b) 式が急変しなければ良いとされた。この条件は, Si 結晶の 111 反射では $\Lambda \gg 0.055 \mu\text{m}$ の値が示された。従って記号 \gg が 100 倍を目安とすると, $\sim 5 \mu\text{m}$ 以下の X線トポグラフィ上のコントラストが急変しなければ良い。つまり Takagi の理論が適用されることを示している。これは通常の実験条件では弾性変形の領域を示し, 第三章で論じた MLD 像は適用出来ないことは明らかである。

2波近似の場合 (6-2a) 式は 2 階の双曲型偏微分方程式になる。(6-2a) 式には多数の透過及び回折波の相互作用が見られるが, 双曲型方程式ではこれら相互作用がたたみ込まれた形で表現され, 透過或いは回折波だけの合成された波動の方程式になっている。これ等の干渉の結果として生じる波動は Fig. 6-1 に示す三角形 ΔPAB の波動場の中で生じる定在波のごとき解を与える。方程式の形は次の如くである:

$$\frac{\partial^2 \vec{D}_0}{\partial s_0^2 \partial s_h} - i2\pi K \beta'_h \frac{\partial \vec{D}_0}{\partial s_0} + \pi^2 K^2 C_0^2 \chi_h \chi_h^- \vec{D}_0 = 0$$

$$\frac{\partial^2 \vec{D}_h}{\partial s_h^2 \partial s_0} - i2\pi K \beta'_h \frac{\partial \vec{D}_h}{\partial s_0} + (\pi^2 K^2 C_0^2 \chi_h \chi_h^- - i2\pi K \frac{\partial \beta'_h}{\partial s_0}) \vec{D}_h = 0 \quad \text{--- (6-2b)}$$

$$\beta'_h = \beta_h - \beta_{hd}, \quad \beta_{hd} = \frac{1}{K} \cdot \frac{\partial(\vec{H}\vec{U})}{\partial s_h}, \quad |\vec{H}| = \frac{1}{d}, \quad |\vec{K}| = \frac{1}{\lambda} = K,$$

ここで s_0 と s_h は Fig. 6-1 に示す斜交座標で, β'_h は共鳴誤差関数である。 β_h は理想結晶における Bragg 条件の外れによる成分 β_h と, 歪んだ結晶による β_{hd} の二成分から構成されている。式の形から β'_h は回折方向一波長(X線)当りの回折角 θ_B の変化を示している。

(6-2b) 式は Riemann の積分方程式により解析解がまっぴり定まり, 合成波振中は次のごとく定まる,

$$\vec{D}_i(\vec{P}) = \int_{AB} \phi_i(\vec{P}\vec{r}') \vec{\Phi}(\vec{r}') K \gamma_0(\vec{r}') d\vec{r}' \vec{e}_i, \quad i = 0 \text{ or } h \quad \text{--- (6-3)}$$

上式中積分核となる ϕ_i は観測点 \vec{P} と結晶入射側表面の座標 \vec{r}' の関数 (Fig. 6-1 参照) で

定まり、透過波と回折波に対して次の形を持つ:

$$\left. \begin{aligned} \phi_0(\vec{P}, \vec{r}') &= \frac{\delta(\vec{r}')}{K r_0(\vec{r}')} - \frac{1}{K \sin^2 2\theta_B} \left[\frac{\partial v_0(\vec{P}, \vec{r}')}{\partial s_h} + i 2\pi K \beta'_h(\vec{r}') v_0(\vec{P}, \vec{r}') \right], \\ \phi_h(\vec{P}, \vec{r}') &= -i \pi C_0 \chi_h v_h(\vec{P}, \vec{r}') / \sin 2\theta_B, \quad \vec{e}_i; \text{ unit vector} \end{aligned} \right\} \text{--- (6-3a)}$$

上式で v_0, v_h は下に記す Riemann 関数で、 \vec{e}_i は伝播方向の単位ベクトルを示している。

(6-3) 式は Takagi 方程式の積分表示であり、結晶の波動場の中の波の形が入射波の波の形に依存

する事を示している。又 (6-3a) に示すごとく、歪による振動とインパルス応答を示す Riemann 関数が波動場

に与える影響が見られる。従って入射波面が球面波であれば、波動場中の波面も球面波となる。

波動場内の波の伝播にわたる生じる波面の変化を詳細に表現する位相項は、方程式の中に複素項と

に分散していることが見られるが、陽な形では示されていない。これは Riemann の方法の特徴と言える。

Takagi 方程式 (6-2) の適用条件は上にも記したが、比較的波の振幅及び位相がゆるやかに生じてい

る範囲に限られている。従って、急激な振幅及び位相変化は別の方法で補わなければならない。この問題点

は 6-4 節で論ぜられる。(6-3a) 式に見られる Riemann 関数は次に示す連伴方程式で定義

される:

$$\frac{\partial^2 v_0}{\partial s_0 \partial s_h} + i 2\pi K \beta'_h \frac{\partial v_0}{\partial s_0} + (\pi^2 K^2 C_0^2 \chi_h \chi_{\bar{h}} + i 2\pi K \frac{\partial \beta'_h}{\partial s_0}) v_0 = 0, \quad \text{--- (6-4a)}$$

$$\frac{\partial^2 v_h}{\partial s_0 \partial s_h} + i 2\pi K \beta'_h \frac{\partial v_h}{\partial s_0} + \pi^2 K^2 C_0^2 \chi_h \chi_{\bar{h}} v_h = 0. \quad \text{--- (6-4b)}$$

Riemann 関数に対する境界条件は次式で与えられる,

$$s_0 = s_0^0, \quad \frac{\partial v_i}{\partial s_h} = i 2\pi K \beta'_h v_i = 0, \quad (v_i = v_0 \text{ and } v_h) \text{ on } \overline{PB},$$

$$s_h = s_h^0, \quad v_i = 1 \quad (v_i = v_0 \text{ and } v_h) \text{ on } \overline{PA} \quad \text{--- (6-4c)}$$

6-3 修飾リーマン関数

Takagiの理論が発表されて以来、数多くの研究者が特殊な条件下における Riemann 関数の解析解を提出した。〔Uragami (1969, '70, '71), Katagawa & Kato (1974), Balibar (1969), Petrashen (1974), Chukhovskii (1974)〕。しかし、久しい間にはこれらの解を歪の変化する状態が、全く歪の無い状況から過度に歪が入る状況まで連続的に変化する場合、例えば MLD 法で通常観察されるこ

き状態に適用する際に不便が感じられた〔Hashimoto, Kozaki & Ohkawa (1965, '68), Ohkawa & Hashimoto 1980〕。以下に歪の形態に関係のない修飾 Riemann 関数を求める試みがなされた。

方法は二段階になっており、まず共鳴誤差 β'_h が小さい擾動と見做せる場合、次いで擾動が大きくなり波動場の場所の関数となる場合に別れる。第一段階は次に示すごとく擾動展開を行う：

$$\frac{\partial^2 v_h}{\partial s_0 \partial s_h} + \pi^2 k^2 c_0^2 \chi_h \chi'_h v_h + \beta'_h i 2\pi k \frac{\partial v_h}{\partial s_0} = 0, \quad \text{---(6-5)}$$

$$v_h = v_{h0} + \beta'_h v_{h1} + \beta_h^2 v_{h2} + \dots$$

2次以上の β'_h の擾動項を無視し、Fourier積分及び留数の定理を用いた結果、(6-5)式の v_h の級数中の右辺第1, 第2項の解で、境界条件 (6-3c) を満たすものが次のごとく求まった：

$$v_0 \cong v_h = \sum_0 (\alpha \sqrt{(s_0 - s_0^0)(s_h - s_h^0)}) \{ 1 - i 2\pi k (s_h - s_h^0) \beta'_h \}, \quad \text{---(6-6)}$$

ここで s_0^0 と s_h^0 は Fig. 6-1 に示す P 点の座標である、又 $\alpha = 2\pi k c \sqrt{\chi_h \chi'_h}$ であり、 $\sum_0(s_0, s_h)$ は 0 次の円筒関数である。(6-4a) 式から明らかのように $\partial \beta'_h / \partial s_0 = 0$ であれば v_h を v_0 の代りに用いることができる。様々な歪状態の有る結晶における Riemann 関数を求める第一段階では β'_h 及び

$\partial \beta'_h / \partial s_0$ は波動場内の位置の関数となり、特定の歪^{歪式}の存在下では解析解が得られた〔Litzman et al.

(1974), Chukhovskii et al. (1977)〕。ここでは、(6-6) 式を第一近似として修飾 Riemann 関数が次のごとく試みられた；

$$U_i^m(S_0, S_h) = \pi_i(S_0, S_h) \cdot U_h(S_0, S_h), \quad \text{--- } i = 0 \text{ or } h \quad \text{---(6-7)}$$

ここで $\pi_i(S_0, S_h)$ は Riemann 関数に対する位相修飾関数と考えられている。(6-7)式を(6-5)式

に代入すると π_i が従うべき方程式が次のごとく定まる:

$$U_i \cdot \frac{\partial^2 \pi_i}{\partial S_0 \partial S_h} + \left(\frac{\partial U_i}{\partial S_h} + i2\pi K \beta_h' U_i \right) \cdot \frac{\partial \pi_i}{\partial S_0} + \frac{\partial U_i}{\partial S_0} \cdot \frac{\partial \pi_i}{\partial S_h} + \epsilon_i \left(i2\pi K \frac{\partial \beta_h'}{\partial S_0} \right) U_i \pi_i = 0, \quad \text{---(6-8)}$$

$$i = 0 \text{ or } h, \quad \epsilon_0 = 1, \quad \epsilon_h = 0.$$

π_i の具体的な形に次に示す関数形を仮定すると、解析解が容易に求まることが分った、

$$\begin{aligned} \pi_0 &= \exp \left\{ iN(S_0, S_h) S_0 + iM(S_0, S_h) S_h \right\} \\ \pi_h &= \exp \left\{ iM(S_0, S_h) S_0 + iN(S_0, S_h) S_h \right\} \end{aligned} \quad \text{--- (6-9)}$$

若し、 N と M が 双方共 実空間に在れば 修飾は Riemann 関数(6-6)に対する単純な位相修飾である。

N と M が 複素数ならば 修飾は Riemann 関数の振巾変化を伴うことになる。関数 N と M

は 波動場の観測点 $P(S_0^0, S_h^0)$ の周辺で次のごとく展開される、

$$\left. \begin{aligned} N &= N_0(S_0^0, S_h^0) + (S_0 - S_0^0) \frac{\partial N}{\partial S_0} + (S_h - S_h^0) \frac{\partial N}{\partial S_h} + \dots \\ M &= M_0(S_0^0, S_h^0) + (S_0 - S_0^0) \frac{\partial M}{\partial S_0} + (S_h - S_h^0) \frac{\partial M}{\partial S_h} + \dots \end{aligned} \right\} \quad \text{---(6-10)}$$

(6-8)式中に見られる実数的係数は、 β_h' 及び $\partial \beta_h' / \partial S_0$ が観測点 P の周辺で展開され、次のごとく T ,

U , V などと表現されると、求められる。

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial U_i}{\partial S_h} + i2\pi K \beta_h' U_i \Big|_{(S_0^0, S_h^0, \Delta S_0, \Delta S_h)} &= T_0(S_0^0, S_h^0) + \Delta T(\Delta S_0, \Delta S_h), \\ \frac{\partial U_i}{\partial S_0} \Big|_{(S_0^0, S_h^0, \Delta S_0, \Delta S_h)} &= U_0(S_0^0, S_h^0) + \Delta U(\Delta S_0, \Delta S_h), \\ i2\pi K U_i \frac{\partial \beta_h'}{\partial S_0} \Big|_{(S_0^0, S_h^0, \Delta S_0, \Delta S_h)} &= V_0(S_0^0, S_h^0) + \Delta V(\Delta S_0, \Delta S_h) \end{aligned} \right\} \quad \text{--- (6-11)}$$

ここで用いられている関数は、 β_h' が分れば全て既知の複素関数である。

修飾関数 Π_i の 1 次近似を求めるには (6-10), (6-11) 式中の 0 次項を用いる。 (6-9), (6-10) 及び (6-11) 式を (6-8) 式に用いると, (6-9) 式による 1 次の補正が次のごとく求まる:

$$N_0(s_0^\circ, s_h^\circ) = \frac{i T_0 V_0}{(T_0^2 - U_0^2)}, \quad M_0(s_0^\circ, s_h^\circ) = \frac{i U_0 V_0}{\{U_0^2 - T_0^2 + V_0 U_0 (s_0^\circ, s_h^\circ)\}} \quad \text{--- (6-12)}$$

(6-6), (6-9) 及び (6-12) 式を組合せて, 境界領域で小さい歪み歪配を仮定した境界条件 (6-4c) を満足する 1 次近似の修飾 Riemann 関数が得られた。又, 更に逐次近似を行うことにより, 要求される精度までの高次の補正が成し得ると考えられた。共鳴誤差関数 β_h' に求めようとする条件は連続性と距離に対する 2 回の微分が求まる事であった。結晶格子の歪の効果は, 関数 T, U, V の中に含まれている, 従って修飾関数 Π_i は結晶の局部変位による歪の関数と考え得るが, 同時に局部的な電気分極率変化も伴っている事は確かである。依つて物理的な像を明確にするために次の展開が予想された。

$$\Pi_i = \Pi_i^0 + (X_h - X_h^0) \frac{\partial \Pi_i}{\partial X_h} + \frac{1}{2!} (X_h - X_h^0)^2 \frac{\partial^2 \Pi_i}{\partial X_h^2} + \dots \doteq \Pi_i^0 + \Delta X_h \frac{\partial \Pi_i}{\partial X_h} \quad \text{--- (6-13)}$$

結晶の変形歪が小さい場合修飾関数は変化しない, すなわち $\Pi_i = \Pi_i^0 = 1$ と考えらるので,

次のごとく展開の可能性が予想された,

$$\Pi_i = 1 + \frac{\partial \Pi_i^0}{\partial X_h} (X_h - X_h^0) + \dots \quad \text{--- (6-14)}$$

(6-13), (6-14) 式は単なる関数関係であり, (6-16), (6-26) などと組合せて求まると予想されたが,

物理的には明快な結果を表現している。すなわち, 局部的結晶のみたれによる電気分極率変化が,

インパルス応答である Riemann 関数の振中乃至は位相に修飾を加える事である。

6-4 X 線球面波方程式の再構成

6-4-1) 前節に記した如く, 結晶のみたれが大きくなった場合 Takagi 理論は適応性を失う。

Takagi 理論の適応性を拡張するために次の展開が行われた。波動場における位相関係を明確

にするために結晶内における 2 次の合成波は次の形式を持つと仮定された。

$$\vec{D} = \sum_j C_j(\vec{r}) \vec{D}_j(\vec{r}) \exp(-iS_j(\vec{r})), \quad j = 0 \text{ and } h \quad \text{---(6-15)}$$

ここで \vec{D}_j は Takagi 方程式によって与えられる(6-3)で示された積分された電気変位ベクトルである。 $S_j(\vec{r})$ は位相関数で一般には Eikonal 関数と呼ばれている。 $C_j(\vec{r})$ は振幅補正関数である。 \vec{D}_j ベクトルも位相項を持つことが前節で指摘されているが、その変化は小さいので振幅の中にまとめ込んでおく事にする。(6-15)式は結晶内波動場が生じる合成波の電気偏位ベクトルであり、その偏光方向は入射する波の偏光方向とは、前章に記したごとく、又 Molière (1939) が指摘したごとく異なる偏光する場合があるので、必ずしも一致しないがここでは簡単化のため入射波と結晶内波の偏光方向は一致し、かつ一般に行われるように X 線回折の入射面に垂直な成分と一致させる。結晶内の X 線の波動ベクトル \vec{k}_0 と \vec{k}_h で定まる入射面内に Fig. 6-1 に示す x, z の座標を設け、入射面に垂直方向に y 軸を設ける。そして通常の古典論が行うように、 \vec{D} の入射面に垂直な成分 $\vec{D}_\perp(x, y, z)$ のみを上述の理由で論じた。電磁波は急変波成分を持たない(Koba et al. 1974), 電気偏位ベクトル $\vec{D}_\perp(x, y, z)$ は y 軸成分のみを考える事になり、スカラー関数を取事に X 線着した。従って、Maxwell 方程式は次の形となった:

$$\begin{aligned} \vec{i} \frac{\partial^2}{\partial x \partial y} \chi D + \vec{j} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} + 4\pi^2 k^2 - \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) \chi \right) D \\ + \vec{k} \frac{\partial^2}{\partial y \partial z} \chi D = 0 \end{aligned} \quad \text{---(6-16)}$$

上式で、 $\vec{i}, \vec{j}, \vec{k}$ はそれぞれ x, y, z 軸方向の単位ベクトルである。(6-16)式の x, z 軸成分から次の方程式が得られる,

$$\frac{\partial^2}{\partial x \partial y} \chi D = 0, \quad \frac{\partial^2}{\partial z \partial y} \chi D = 0 \quad \text{---(6-17)}$$

標準的な求積法で解いて、次のごとく構内面の波面が導出された、すなわち:

$$2R(xD + y) + 2(y^2 - zy) + z^2 + x^2 = R^2 \quad \text{---(6-18)}$$

上式で、 R は波面の半径であり、 xD は波面に局所的変化を及ぼす擾動であると考えられた。(6-16)は

(6-18)式を用いて波動方程式は次の如く入射面内だけの積分で導かれることが分った。

$$\left\{ \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) + 4\pi^2 k^2 - \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) x \right\} D(x, z) = 0 \quad \text{--- (6-19)}$$

次のとき簡略された表記法を用いると、(6-19)式は(6-20)式に至る、

$$xD = \sum_h \sum_j \chi_h(\vec{r}) e^{-iG_h} \cdot D_j' e^{-iS_j} \quad , \quad G_h = 2\pi \vec{H}(\vec{r} - \vec{u}),$$

$$D_j' = C_j D_j \quad , \quad \frac{\partial D}{\partial x} \equiv D_x \quad , \quad \frac{\partial^2 D}{\partial x^2} \equiv D_{xx} \quad , \quad \frac{\partial S_j}{\partial x} \equiv S_{jx} (= 2\pi k_x) \quad ,$$

$$\left\{ \mathcal{L}_1 D_j + \mathcal{L}_2 D_{jx} + \mathcal{L}_3 D_{jz} + C_j \mathcal{L}_4 \right\} \exp(-iS_j) = 0 \quad \text{--- (6-20)}$$

(6-20)式中の $\mathcal{L}_1, \mathcal{L}_2, \mathcal{L}_3$ 及び \mathcal{L}_4 は次のとき関数係数である、

$$\mathcal{L}_1 = \left[\begin{aligned} & C_j xx + C_j zz - i \left\{ 2(C_{jx} \cdot S_{jx} + C_{jz} S_{jz}) + C_j S_{jxx} + C_j S_{jzz} \right\} \\ & + \sum_h \chi_h(\vec{r}) \left\{ C_j (G_{hx}^2 + G_{hz}^2) - (C_{jxx} + C_{jzz}) + 2C_j (G_{hx} S_{jx} + G_{hz} S_{jz}) \right. \\ & \left. + i \left\{ C_j (S_{jxx} + S_{jzz}) + 2(C_{jx} + C_{jz}) + C_j (G_{hxx} + G_{hzz}) + 2(C_{jx} G_{hx} + C_{jz} G_{hz}) \right\} \right\} \end{aligned} \right] \quad \text{--- (6-21a)}$$

$$\mathcal{L}_2 = \left[2C_{jx} + \sum_h \chi_h(\vec{r}) \left\{ i 2(C_j G_{hx} + C_j S_{jx}) - 2C_{jx} \right\} \right] \quad \text{--- (6-21b)}$$

$$\mathcal{L}_3 = \left[2C_{jz} + \sum_h \chi_h(\vec{r}) \left\{ i 2(C_j G_{hz} + C_j S_{jz}) - 2C_{jz} \right\} \right] \quad \text{--- (6-21c)}$$

$$\mathcal{L}_4 = \left[\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} - i 2(S_{jx} \frac{\partial}{\partial x} + S_{jz} \frac{\partial}{\partial z}) + 4\pi^2 k^2 - (1 - \sum_h \chi_h(\vec{r})) (S_{jx}^2 + S_{jz}^2) - \sum_h \chi_h(\vec{r}) \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) \right] \cdot D_j \quad \text{--- (6-21d)}$$

Takagi 方程式 (6-2a) は上記 (6-21d) 式より導出することが出来た。上述の取扱の中で、Takagi 方程式が導出の過程で省略した項が (6-21a), (6-21b) 及び (6-21c) に示す方程式中に見出せる。

D_j, D_{jx}, D_{jz} 及び C_j などの関数は一般に独立な関数であり、同時に消失することは無いので、有効な解は (6-21a, b, c, d) などの関数係数が恒に零であれば (6-20) 式を満す波動解が得られる。

方程式(6-21d)は既に Takegi により解かれた (Takegi 1969)。故に、 $\alpha_1 = \alpha_2 = \alpha_3 = 0$ になる解を見出せば、この解は任意の歪んだ結晶に適用出来る事になった。本近似において、位相因子に關係の深い項を多数含んでいる α_1 係数から EIKONAL 近似が導出された。振中補正関数 C_j は α_2 及び α_3 係数から導かれた。

6-4-(2) 振中補正関数 $C_j(\vec{r})$ の決定

補正関数に關する方程式(6-21b)及び(6-21c)は次のごとく整理出来る、

$$C_{jk}(1 - \chi(\vec{r})) + iC_j \chi(\vec{r})(G_{hk} + S_{jk}) = 0 \quad \text{----- (6-22)}$$

上式中 k は x 又は y を代表し、 $\chi(\vec{r}) = \sum_h \chi_h(\vec{r}) = \sum_h \chi_h e^{-iG_h(\vec{r})}$ であり、 C_j は $C_j(\vec{r})$ を意味する。

今考えている領域で分極率の変化が無視出来ると仮定すると、任意常数は無視し、

$$\int \sum_h \chi_h(\vec{r}) S_{jx} dx = \bar{\chi} \int S_{jx} dx = \bar{\chi} S_j \quad \text{----- (6-22a)}$$

と近似出来る。ここで $\bar{\chi}$ は波動場の平均的分極率である。(6-22a)式を用いると、補正関数 C_j

の一次近似は(6-22)式中の第1項の $\chi(\vec{r}) \ll 1$ を無視して次のごとく表わせば、 $C_j^{(0)}$ は以下に示す常数として、

$$C_j^{(0)} = C_j^{(0)} \exp \left\{ \sum_h \chi_h e^{-iG_h(\vec{r})} - i\bar{\chi} S_j \right\} \quad \text{---- (6-23)}$$

及び $C_j^{(0)}$ の微分係数は、

$$C_{jk}^{(1)} = -iC_j^{(0)} \left\{ \sum_h \chi_h e^{-iG_h(\vec{r})} \cdot (G_{hk} + S_{jk}) \right\}, \quad k = x \text{ or } y \quad \text{---- (6-24)}$$

振中補正関数の一般解は、(6-23)の一次近似解を用いて、

$$\left. \begin{aligned} C_j^{(2)} &= C_j^{(0)} + \chi(\vec{r}) M_j \\ M_j &= (C_j^{(0)} \log C_j^{(1)} + C) \cdot \left(\frac{C_j^{(1)}}{C_j^{(0)}} \right) = C_j^{(0)} \log C_j^{(1)} + C' \end{aligned} \right\} \quad \text{---- (6-26)}$$

ここで C' は任意定数である。振中補正関数の境界条件は歪の存在しないところでは 1 である。又、簡単のため座標の原点には歪が入っていないと仮定すると、 C_j の初期振中 $C_j^{(0)}$ が定まる：

$$C_j^{(0)} = \exp \left\{ - \left(\sum_h \chi_h e^{-i G_h \cdot r} - i \bar{\chi} S_j(0) \right) \right\} \quad \text{--- (6-27)}$$

(6-23) 及び (6-27) を用い、 $|C_j| \cong 1$ であることとを推定すると、複素変数 $\varphi = \varphi_r + i\varphi_i$ を用いて、簡単な表現

$$\log C_j^{(0)} = i\varphi, \quad \text{又は } C_j^{(0)} = \exp(i\varphi_r - \varphi_i) \quad \text{--- (6-28)}$$

が得られる。

φ の実数項、虚数項は (6-23) などから分るように、波動場内の位置の関数であり、格子の歪などは、

$G_h \equiv h(r-u)$, $h = 2\pi H$ などの値を通じて C_j の中へ反映されている。(6-28) 式を用いると振中補正関数

に対する一般解 (6-26) は次のごとくである:

$$C_j^{(2)} = C_j^{(0)} + \bar{\chi} C_j^{(0)} \{ i\varphi + C'' \} = C_j^{(0)} (1 + \bar{\chi} [C'' + i\varphi]), \quad j = 0 \text{ or } h \quad \text{--- (6-29)}$$

上式中 C'' は任意常數で、後述する Eikonal 関数との関係で $C'' = 1/2\bar{\chi}$ と定めた。関数 φ の形は結晶格子の変位などに依存しているが、補正量 C_j は元来小さい、1 に非常に近いと考えられるので、今考えている Bragg 条件からの微小な角度の外れ量 W によって級数展開が出来ると考えられた。すなわち、

$$\varphi = \varphi_0 + \varphi_1 W + \varphi_2 W^2 + \dots + \varphi_k W^k + \dots \quad \text{--- (6-30)}$$

$\varphi_k (k=0, 1, \dots)$ などは結晶の状態で決まる複素量である。例之は " $C_j^{(0)}$ " が 1 であるとして、

(6-28) 式に示す φ は次のごとくになる:

$$\varphi_r = \bar{\chi}_i - \bar{\chi}_r S', \quad \varphi_i = -\bar{\chi}_r - \bar{\chi}_i S', \quad \text{--- (6-30a)}$$

ここで S' は波の経路にわたる位相であり $S' = 2\pi r/\lambda$ と書ける、又 (6-28) から分る通り、 φ_r は振動項であり φ_i は減衰項である。

6-4-(3) Eikonal 関数の決定

方程式 (6-21a) は、 S_{jxx} , S_{jzz} , G_{hxx} , G_{hzz} などとは比較して小さい量と考へるので

無視すると次の如く簡単化される、

$$\mathcal{L}_1 = C_{jxx} + C_{jzz} - i2(C_{jx}S_{jx} + C_{jz}S_{jz}) + \sum_h \chi_h(\vec{r}) \left\{ 2C_j(G_{hx}S_{jx} + G_{hz}S_{jz}) + i2(C_{jx} + C_{jz}) \right. \\ \left. + C_j(G_{hx}^2 + G_{hz}^2) + 2i(C_{jx}G_{hx} + C_{jz}G_{hz}) \right\} = 0 \quad \text{--- (6-31)}$$

以下、2波近似の場合の透過波のEikonalのみ計算した。回折波についても全く同様な手続で求まる事が分った。(6-31)式は更に次に示すべく整理出来た。

$$\left\{ iC_{0x} + \sum_h \chi_h(\vec{r}) C_0 G_{hx} \right\} \frac{\partial S_0}{\partial x} + \left\{ iC_{0z} + \sum_h \chi_h(\vec{r}) C_0 G_{hz} \right\} \frac{\partial S_0}{\partial z} \\ = \frac{1}{2}(C_{0xx} + C_{0zz}) + \sum_h \chi_h(\vec{r}) \left\{ iC_{0x}(1+G_{hx}) + iC_{0z}(1+G_{hz}) + \frac{1}{2}C_0(G_{hx}^2 + G_{hz}^2) \right\} \\ = \frac{1}{2}(C_{0xx} + C_{0zz}) + i \sum_h \chi_h(\vec{r}) \left\{ C_{0x}(1+G_{hx}) + C_{0z}(1+G_{hz}) \right\} + \sum_h \chi_h C_0 G^2/2 \\ \doteq \frac{1}{2}(C_{0xx} + C_{0zz}) + \sum_h C_0 \chi_h(\vec{r}) G^2/2, \quad \text{--- (6-32)}$$

ここで C_0 は透過波, K_0 波に対する振中補正関数である, 又 $G^2 = G_{hx}^2 + G_{hz}^2 \cong \vec{h}^2 = 4\pi^2 H^2$ である。

(6-32)式の導出については、 χ^2 を持つ項は無視した。 $\chi^2 \approx 10^{-12}$ であるので他の項に比して小さからである。

同じく (6-32) 式の $\sum C_0 \chi_h G^2/2$ の項も通常の実験条件下では無視し得る。従つてEikonalの方程式は

次のごとくなる:

$$\left\{ iC_{0x} + C_0 \sum_h \chi_h(\vec{r}) G_{hx} \right\} \frac{\partial S_0}{\partial x} + \left\{ iC_{0z} + C_0 \sum_h \chi_h(\vec{r}) G_{hz} \right\} \frac{\partial S_0}{\partial z} = -C_0 \chi(\vec{r}) 4\pi^2 K^2 (1+i\phi) \quad \text{--- (6-33)}$$

ここで $|K|^2 = K^2 = |K_x|^2 + |K_z|^2$, $K \equiv K_{\text{crystal}} = n K_{\text{vac}}$; (χ 線の振動数に対してEikonalは関与しないが、振動数 ν には $\nu_{\text{vac}} = \nu_{\text{crystal}}$ の条件があることは自明である) --- (6-33a)

(6-33a) の n は屈折率である。(6-33a)式は古典的に見たエネルギー・モメンタムの保存関係であり、

結晶と真空の間にある波動ベクトルに対する境界条件と見做された。方程式(6-33)は標準的お法

で容易に積分が出来た。Eikonal S_0 に対する境界条件は、波面上で一定の値を持つと言う事にした。即ち、球面波として、合成波が茶散角 ($\chi = \chi_0$, $z = z_0$) から伝はれ、原点から z へ (z は正数, λ は波長) 進む

た円の上で(y軸を考えると球になるが)位相が一定になるように境界を設定した, 簡単化のため $t=1$ とおき,

$$(x - \xi_0)^2 + (z - \zeta_0)^2 = \lambda^2 \quad \text{--- (6-34)}$$

(6-33), (6-34) を用いて透過波に対する Eikonal 位相関数は次の如く得られた:

$$\Sigma_0 = -\frac{2\pi}{1 + \Sigma} (K_x h_1 A + K_z h_1 B) \left(1 \pm \sqrt{1 + 4 \frac{(K_x^2 A^2 + K_z^2 B^2)(h_1^2 + h_2^2 - \lambda^2)}{(K_x A h_1 + K_z B h_2)^2}} \right) \quad \text{--- (6-35)}$$

(6-35) 式中のパラメータは:

$$A = \eta \left\{ \left(1 + \frac{e^{i\varphi}}{2} \right) + \frac{\alpha_{hx} (h_x - \partial \bar{h} \bar{u} / \partial x) e^{i\varphi}}{4\pi K_x \cdot \eta} \right\} \quad \text{--- (6-36)}$$

$$B = \eta \left\{ \left(1 + \frac{e^{i\varphi}}{2} \right) + \frac{\alpha_{hz} (h_z - \partial \bar{h} \bar{u} / \partial z) e^{i\varphi}}{4\pi K_z \cdot \eta} \right\} \quad \text{--- (6-37)}$$

$$h_1 = x - \xi_0 + \frac{\alpha_{hx} e^{i\varphi}}{16\pi A K_x} \frac{\partial^2 \bar{h} \bar{u}}{\partial x^2} - \frac{K_x A \Gamma}{2\pi K^2 (1 + e^{i\varphi/2})} \quad \text{--- (6-38)}$$

$$h_2 = z - \zeta_0 + \frac{\alpha_{hz} e^{i\varphi}}{16\pi B K_z} \frac{\partial^2 \bar{h} \bar{u}}{\partial z^2} - \frac{K_z B \Gamma}{2\pi K^2 (1 + e^{i\varphi/2})} \quad \text{--- (6-39)}$$

(6-35) 式中 Σ は Σ_A 又は Σ_B を意味する. 又 $\Sigma_A \cong \Sigma_B$ であり.

$$\Sigma_A = 2 \left(1 + \frac{i\varphi}{2} \right) \left(\frac{1}{2} + \frac{\alpha_{hx} (h_x - \frac{\partial \bar{h} \bar{u}}{\partial x}) (1 + \frac{i\varphi}{2})}{2\pi K_x \cdot \eta} \right) + \left(\frac{1}{2} + \frac{\alpha_{hz} (h_z - \frac{\partial \bar{h} \bar{u}}{\partial z}) (1 + \frac{i\varphi}{2})}{2\pi K_z \cdot \eta} \right)^2,$$

などの表現が得られる, 又 η は符号因子で $\xi_0 < 0$ のとき $\eta = +1$, $\xi_0 > 0$ のとき $\eta = -1$ なる, Γ は Eikonal の位相定数で, 6-8 節で論ぜられる. α_{hx} 及び α_{hz} なる因子は次のごとく定義される:

まず次の関係に注目す

$$\frac{1}{\lambda} \sum_h \chi_h(\vec{r}) G_{hx} = \sum_h f_h \cdot G_{hx}, \quad f_h = \frac{\chi_h(\vec{r})}{\lambda} < 1$$

よて平均値 \bar{f}_h を用いると, $\sum_h \frac{\chi_h}{\lambda} \cdot G_{hx} = \bar{f}_h \cdot n \cdot \bar{G}_{hx} = \bar{G}_{hx}$ を得る. 此の \bar{G}_{hx} は格子ベクトルの

2π 倍を全格子面にわたって平均したものの x 軸成分である. 今一つの格子ベクトル $G_{hx}/2\pi \equiv h/2\pi$ が

Bragg 条件を満す場合, h ベクトルの x 軸成分は h_x であり, この時係数 $\alpha_{hx} \equiv \bar{G}_{hx}/h_x$ と定義される.

h ベクトルが Fig. 6-2 に示すごとく, z 軸と平行になった場合であっても, 現実の結晶では h_x は零にならない

ので d_{hx} は ~~変数~~ 変数はしない。 \bar{G}_{hx} は結晶の種類と座標のとり方などに依存するので、 d_{hx} も実験条件に依存するパラメータと見做せる。 以上は K_0 波に対する Eikonal S_0 の導出であるが、 K_h 波に対しても同じ過程で S_h を決めることが出来た。

6-4-(4) 波動ベクトルと波動関数の決定

実空間の座標軸が Fig. 6-2 に示すごとく定められたので、透過波に対する波動ベクトルは Eikonal (6-35)

を用いて次のごとく決定された：

$$2\pi \vec{K}_0 = \frac{\partial S_0}{\partial s_0} \vec{e}_{s_0} = \left(\frac{\partial S_0}{\partial x} \frac{\partial x}{\partial s_0} + \frac{\partial S_0}{\partial z} \frac{\partial z}{\partial s_0} \right) \vec{e}_{s_0} \quad \text{---- (6-40)}$$

$$\text{ここで } \frac{\partial x}{\partial s_0} = \cos \theta_0, \quad \frac{\partial z}{\partial s_0} = \sin \theta_0$$

$$\frac{\partial x}{\partial s_h} = \cos(2\theta_B - \theta_0), \quad \frac{\partial z}{\partial s_h} = -\sin(2\theta_B - \theta_0)$$

\vec{e}_{s_0} は S_0 軸の単位ベクトルである。

K_h 波に対しても同様な関係が成立する。 こゝまでの K_0 波だけが K_h 波と独立なもののように言われて来た。 しかしながら、 K_0 波と K_h 波の干渉関係は存在し、それはすでに (6-2) 式の中に含まれている。 従って (6-35) 式に見られる正負の複合は、Bragg 条件下の多量の波の共鳴的干渉によって生じる波の振動数の共鳴的分離の結果と見做された。 これは (6-2a) 式が (6-2b) 式に示される 2 階の方程式に成る事から生じたと見做された。

(6-35) に示す Eikonal S_0 は省略した形で次のように記される：

$$S_0 = S_{00} (1 \pm \sqrt{\quad}) = S_{00} (1 \pm R_{s_0}) \quad \text{---- (6-41)}$$

(6-41) 式により、 x 軸方向の波動ベクトルは、

$$2\pi K_x = \frac{\partial S_0}{\partial x} = \frac{\partial S_{00}}{\partial x} (1 \pm R_{s_0}) \pm S_{00} \frac{\partial R_{s_0}}{\partial x} \quad \text{---- (6-42)}$$

(6-42) の第 2 項は第 1 項に比べてはるかに小さい、従って第 1 項だけを波動ベクトルに表現出来ると見做された。

R_{s_0} についての符号は次の考察によって決定された：

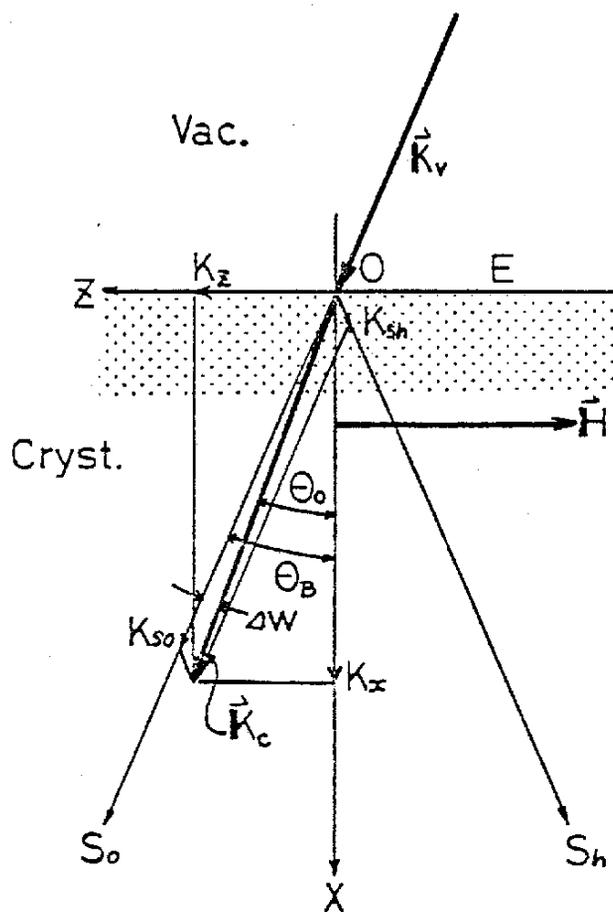


Fig.6-2 Wave vector configuration

θ_B : Bragg angle, θ_o : incidence angle, \vec{H} : lattice vector, E: entrance surface, \vec{K}_v : Wave vector in vacuum, \vec{K}_c : Wave vector in crystal, $K_x, K_z, K_{S_o}, K_{S_h}$: components of \vec{K}_c .

波動場の中の点 $P(x_0, z_0)$ で生じる干渉現象は通常一つの偏光方向に限って取扱われている。しかし厳密には、Molièreが指摘しているように、二波近似の場合には独立な合成調和振動が (6-35) または (6-42) に示されることを共鳴的 Bragg 散乱の中で生じる。これらの独立な波の偏光方向は、共鳴による分極率テンソルの固有値の縮退が解けて生じる独立な二つの固有値に属する直交した固有ベクトルの方向に一致する (Molière 1939)。よってこの二つの合成波動は、それぞれ起した入射波と結合された。かくして結晶中の独立な二つの波は同相で振動する。合成振動は結晶内に生じる部分波の合成であるので (6-12 式を)、合成振動を発生する単独の調和振動子及びその置かれている座標方向は、散乱角は抽象概念にすぎない。(6-42) などが示す二つの独立な、長・短の波動ベクトルの散乱角は等価的に決定するには出来る。すなわち、結晶内の任意点で干渉を生じている二つの波の、(6-34) が定義される、散乱角は長波長側の波のものが、遠い方に在る事になるので、実空間において座標原点が X 線の入射角に選ばれた時共鳴により、長短二波長の波が $\theta = 1$ に生じたとき、等価的な散乱角は長波長側が結晶の外へ、短波長側が結晶の内側に配されることになる。この考察は Fig. 6-3 に示された。長波長の波の散乱角は実空間では $\theta < 0$ となる。一方位相空間においては、二つの波長と偏光の異った波が共鳴を生じている逆格子の原点 0 に至っている。従って短波長の、したがって長い波動ベクトルすなわち $+R_{50}$ 側の波の位相空間内の散乱角は、Eikonal の表面の外側へ出る。一方長波長の、したがって短い波動ベクトルすなわち $-R_{50}$ 側の散乱角は Eikonal の内側へ移動する。Fig. 6-3 に示すように、波動ベクトルは Eikonal の内側を向いている理由は、(6-35) 式に示されるように Eikonal の符号が負だからである。

以上の考察の結果、座標の原点が結晶の X 線入射側表面に固定された時、長波長の波の散乱角は、約 $\theta = 1$ 波長結晶の外へ出す事になる。従って、Riemann 積分法による (6-3) で示された波の基本波は円筒関数の形をとり、一つは 1 次の Bessel 関数 J_1 を持ち、これに対しては短波長が伴隨すると考えた。もう一つの長波長側の波の形は 1 次の Neumann 関数 N_1 を与え、その散乱角は上述のごとく結晶の外にわたる。

かくして、座標原点における Neumann 関数の特異性は取除かれた。さて、一つの偏光に属する入射波により、

結晶内には二つの偏光方向を有する、二つの独立した基本波を得ることになった。結果として、一般的には楕円偏光を

有する結晶内の K_0 波の波動関数の振動部分は次式で与えられる、

$$\vec{\Phi}_0 = \frac{\pi \sqrt{\chi_h \chi_{\bar{h}}}}{\sin 2\theta_{BN}} \sqrt{\frac{S_0 - S_0^0}{S_h - S_h^0}} \pi_0 \left[\vec{e}_1 A_0 J_1(\alpha_N \sqrt{(S_0 - S_0^0)(S_h - S_h^0)}) \right. \\ \left. + \vec{e}_2 B_0 N_1(\alpha_N \sqrt{(S_0 - S_0^0 - S_0') (S_h - S_h^0 - S_h')}) \right] (1 - i2\pi K \beta_h (S_h - S_h^0)), \quad \text{--- (6-43)}$$

上式中 A_0, B_0 は任意定数で境界条件により定められ、 S_0', S_h' は N_1 波のための原点のシフト量である。

\vec{e}_1 と \vec{e}_2 は直交した偏光方向を表わす単位ベクトルである。(6-43)の基本波を用いて、結晶内の電気偏位ベクトルは

次のごとく定まる。

$$\vec{D}_0 = D_0 \vec{j} \cong (\vec{e}_1 A' J_1 e^{-i2\pi(\vec{K}_0 + \vec{R}_{S_0}) \cdot \vec{r}} + \vec{e}_2 B' N_1 e^{-i2\pi(\vec{K}_0 - \vec{R}_{S_0}') \cdot \vec{r}}) \quad \text{--- (6-44)}$$

A', B' は (6-43) 式中に現われている付加項をまとめた係数である。

今、細い X 線光束が結晶上の座標原点に入射した時、 $P(S_0^0, S_h^0)$ 点で観測する^{二つの}楕円偏光の一方の透過波成分

\vec{K}_0 波の電気偏位ベクトル \vec{D}_0 の大きさは、(6-3)式により次のごとく、

$$\vec{D}_0(\vec{P}) = \left[\vec{\Phi}(0) + A_0' \sqrt{\frac{S_0^0}{S_h^0}} \left\{ \vec{e}_1 A_0^0 J_1(\vec{P}) e^{-i2\pi \vec{K}_0^0 \cdot \vec{P}} + \vec{e}_2 B_0^0 N_1(\vec{P}) e^{-i2\pi \vec{K}_0^0 \cdot \vec{P}} \right\} (1 + i2\pi K \beta_h^0 S_h^0) \right] \quad \text{--- (6-45)}$$

ここでは (6-3) 式中の $\vec{\Phi}(\vec{r})$ が δ -関数での置きかえをしいることから定めた (Kato 1961)。

同様に K_h 波は次のごとく、

$$\vec{D}_h(\vec{P}) = A_h' \left[\vec{e}_1 A_0^h J_0(\vec{P}) e^{-i2\pi \vec{K}_h^3 \cdot \vec{P}} + \vec{e}_2 B_0^h N_0(\vec{P}) e^{-i2\pi \vec{K}_h^4 \cdot \vec{P}} \right] (1 + i2\pi K \beta_h^0 S_h^0) \quad \text{--- (6-46)}$$

上式中 $A_0^0, A_h^0, A_0^h, A_h^h, B_0^0$ 及び B_0^h などは境界条件で定める任意定数である。(6-45), (6-46) 式

中、単純化のため振動及び位相補正関数は省略された。波動ベクトルの K -空間における配置は Fig. 6-4 に

示され、(6-45), (6-46) 式中の波動ベクトルの肩に記した番号は、Fig. 6-4 のそれと対応している。

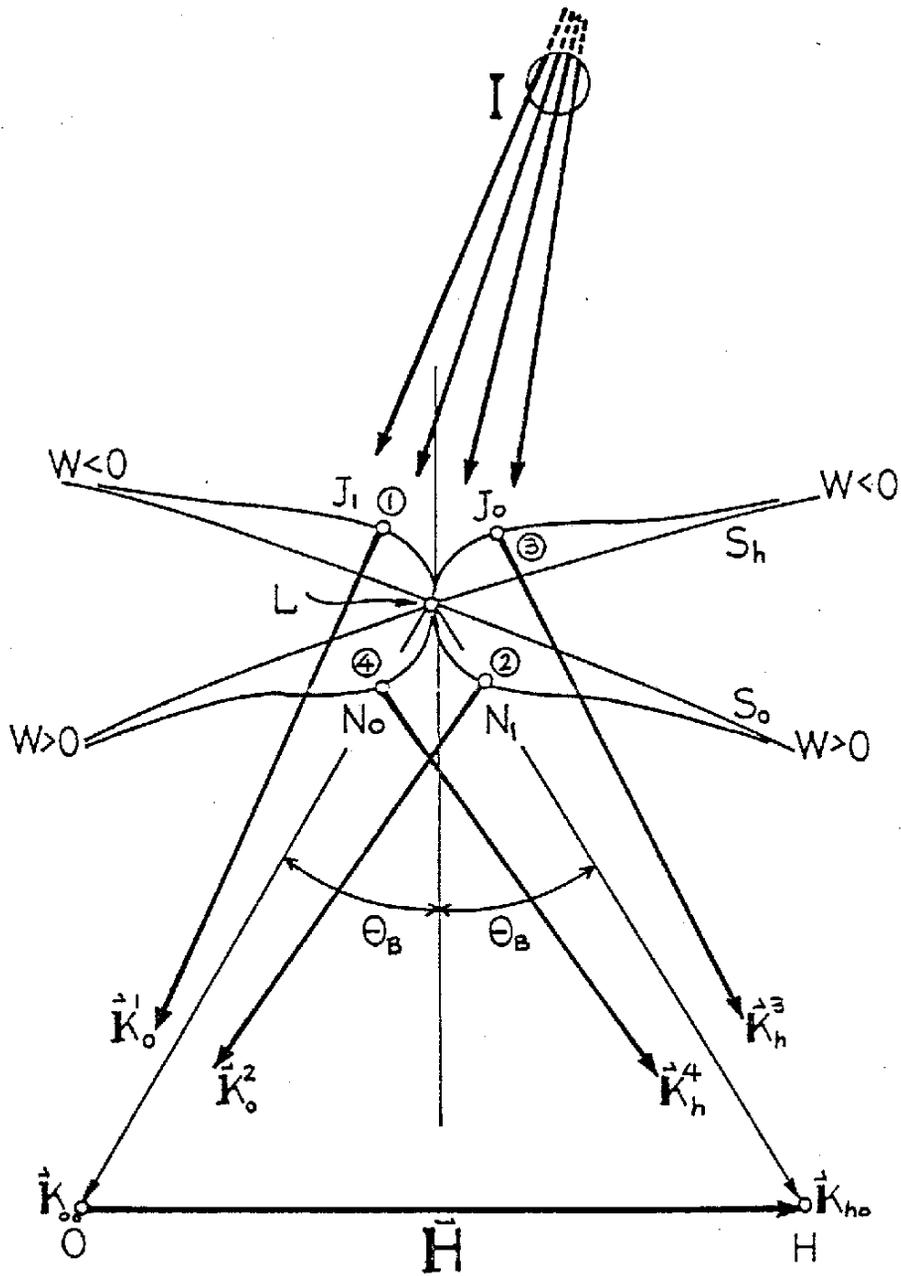


Fig.6-4 Local dispersion surface of spherical waves

I: incidence wave bundle, L: Laue point, W: Angular variable, H: lattice vector, J&N: adopted wave functions, S_0 & S_h : trajectory of eikonal surfaces, K_{00} , K_{h0} : wave vectors in nonresonance, $K_0^1, K_0^2, K_h^3, K_h^4$: wave vectors in resonance.

6-5 不連続的分散面

後述する議論の理解を容易にするために、Lame により導入された双曲面形分散面導入の手続を要約的に記す。動力学的 X線散乱の基本方程式は Maxwell の波動方程式を用いて次のごとく与えられる、

$$\frac{\vec{k}_h^2 - K_0^2}{\vec{k}_h^2} \vec{D}_h = \sum_{g \neq h} \psi_g \vec{D}_g \perp \vec{k}_h, \quad K_0 = |\vec{K}_0|_{\text{VACUUM}} \quad \text{--- (6-47)}$$

ここで \vec{D}_h は結晶内の h 番目の電気偏位ベクトルの振幅で、 \vec{k}_h はその波動ベクトルである。 ψ_g は分極率の 4π 倍である。 $\vec{D}_g \perp \vec{k}_h$ は \vec{k}_g に垂直な \vec{D}_g の成分ベクトルを表わしている。2波近似の場合には、 $\vec{K}_0 = \vec{K}_0(1 - \psi_0)$,
 VAC CRIST

$\psi_0 = -10^{-6} < 0$, なる条件で (6-47) 式に用い更に、入射面に垂直成分: $\vec{D}_{0\perp} = D_0$ などと略記して次式を得る、

$$\left. \begin{aligned} \frac{\vec{k}_0^2 - K_0^2}{\vec{k}_0^2} D_0 &= \psi_h D_h \\ \frac{\vec{k}_h^2 - K_0^2}{\vec{k}_h^2} D_h &= \psi_h D_0 \end{aligned} \right\}, \quad K_0 = |\vec{K}_0|_{\text{CRIST}} \quad \text{--- (6-48)}$$

更に $|\vec{K}_0| - K_{00} = \xi_0$, $|\vec{k}_h| - k_{h0} = \xi_h$, 及び $|\vec{k}_h| \cong |\vec{K}_0|$ などの条件と ξ_0/k_{00} , ξ_h/k_{h0} の高次項を省略すると次式が得られる。

$$\left. \begin{aligned} \frac{2\xi_0 D_0}{k_{00}} - \psi_h D_h &= 0 \\ \psi_h D_0 - \frac{2\xi_h D_h}{k_{00}} &= 0 \end{aligned} \right\} \quad \text{--- (6-48a)}$$

ここで K_{00} は結晶内透過方向波の無擾動な平均的波動ベクトルの値である。(6-48a) 式から良く知られた関係が得られる:

$$\xi_0 \xi_h = \frac{1}{4} K_{00}^2 \psi_h \psi_h \quad \text{--- (6-49)}$$

方程式 (6-49) は k 空間における双曲面的分散面の定義式である。今、(6-48) 式から (6-48a) に至る過程において近似の取り方を、同程度の近似度で変えれば、分散面は双曲形にはならない。

Fig. 6-5 に見られる通り、Bragg 条件は次のごとく書ける、

$$\vec{k}_h = \vec{k}_0 + 2\pi \vec{h}, \quad \text{即ち} \quad \frac{|\vec{h}|}{|\vec{k}_0|} = \frac{\sin \theta_B}{\pi} \quad \text{--- (6-50)}$$

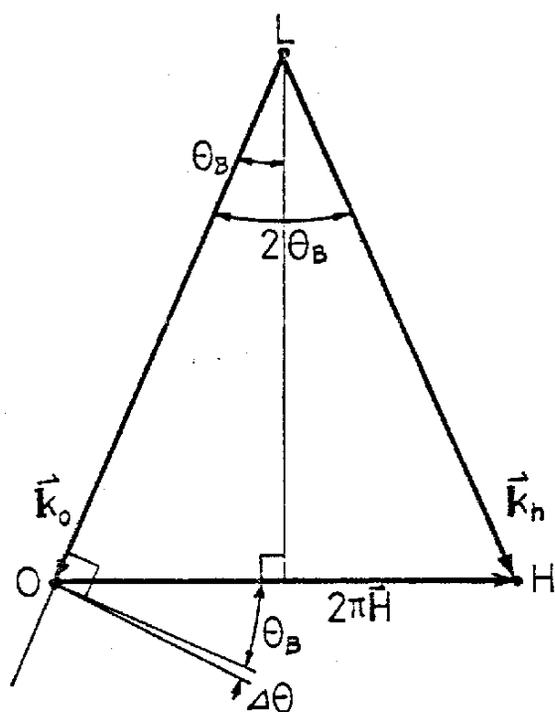


Fig.6-5 Wave vector's configuration

- \vec{k}_o : incidence wave vector
- \vec{k}_h : diffracted wave vector
- \vec{H} : lattice vector
- θ_B : Bragg angle
- $\Delta\theta$: small angle ($=|W|$)
- L : Laue point

(3-50)式を(3-48)式に代入し、更に、 $\left|\frac{\vec{k}_h}{k_0}\right| = \left|1 + 2\pi \frac{h}{k_0}\right| \doteq 1 - 2\pi \frac{|h|}{|k_0|} \cos\theta_B \Delta\theta$ なる関係を用い、

$$k_h^2 - |k_{00}| = 2k_h (|k_0| \left|1 - 2\pi \frac{|h|}{|k_0|} \cos\theta_B \Delta\theta\right| - k_{00}) = 2k_h \left\{ \xi_0 - 2\pi |h| \cos\theta_B \Delta\theta \right\} \quad \text{--- (6-50)}$$

$$\begin{vmatrix} \frac{2\xi_0}{k_{00}} & \psi_h^- \\ \psi_h & \frac{2(\xi_0 - 2\pi |h| \cos\theta_B \Delta\theta)}{k_{00}} \end{vmatrix} = 0 \quad \text{--- (6-51)}$$

同様な方程式は k_h 波に対しても成立する。(6-51)式で Bragg 条件から外れ角 $\Delta\theta = 0$ とすれば (6-48a) と

ほぼ同じ形になることがわかる。(6-51)式から k_0 波に対する共鳴すれが求まる:

$$\xi_0 = \frac{2\pi |h| \cos\theta_B \Delta\theta}{2} \left\{ 1 \pm \sqrt{1 + \frac{k_{00}^2 \psi_h \psi_h^-}{4\pi^2 |h|^2 \cos^2\theta_B \Delta\theta^2}} \right\} \quad \begin{array}{l} - : \Delta\theta > 0 \\ + : \Delta\theta < 0 \end{array} \quad \text{--- (6-52)}$$

(6-52)式は Fig. 6-6 に示した。 $\Delta\theta = 0$ で ξ_0 に飛びが現われている。この不連続性は Bragg

条件下の共鳴によるものと考えられた。(6-52)式の分散曲線に沿って、X線の光子エネルギーを求めると、

$$\begin{aligned} E &= h\nu = hc'k = hc' \{ k_{00} + \xi_0 \} \\ &= hc' \left\{ k_{00} + \frac{2\pi |h| \cos\theta_B \Delta\theta}{2} \left\{ 1 \pm \sqrt{1 + \frac{k_{00}^2 \psi_h \psi_h^-}{4\pi^2 |h|^2 \cos^2\theta_B \Delta\theta^2}} \right\} \right\} \end{aligned} \quad \text{--- (6-53)}$$

c' は結晶中の光速。

(6-53)が示すものは、弾性散乱においても Bragg 条件の近傍では光子のエネルギーが変ることを示している、

そしてその分散角は $\Delta\theta$ で示されている。

6-6 共鳴度関数と分散面

(6-35)式に示した Eikonal を用いて Bragg 条件近傍に現われる位相変化の擾動量が計算された。

その結果、波動ベクトルの微小変化量は次のごとく定義された、

$$|\vec{R}_{s0}| = \sqrt{1 - \frac{(k_x^2 A^2 + k_z^2 B^2)(h_1^2 + h_2^2 - \lambda^2)}{(k_x A h_1 + k_z B h_2)^2}} \quad \text{--- (6-54)}$$

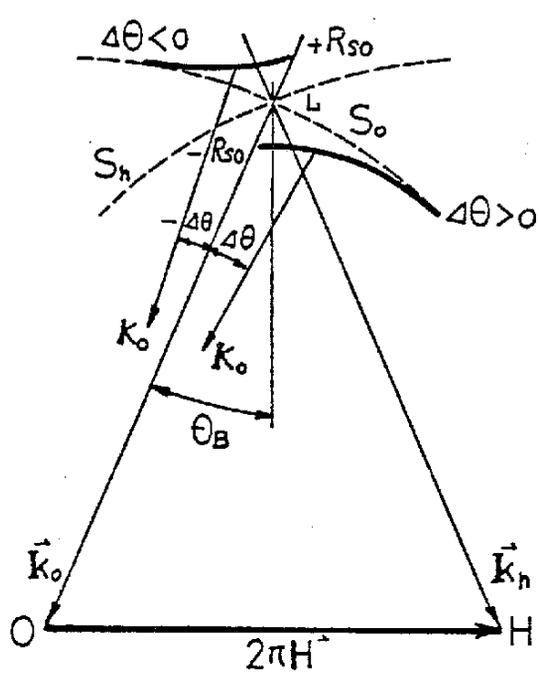


Fig. 6-6 Noncontinuous Dispersion Surface
 R_{so} : resonance shift
 S_o, S_n : eikonals for k_o & k_h

\vec{R}_{s0} は結晶中の K_0 波の Eikonal 表面からの波動矢の相対的変位量を示している。この状況は前節で論じた不連続的分散面の場合と類似している。Kベクトルの共鳴時における可能な変位量は次の条件で制限される、すなわち

$$|\vec{R}_{s0}|^2 = G_0 F_g > 0, \quad \text{---(6-55)}$$

ここで G_0 は理想結晶並びに一定の歪勾配を持つ結晶の共鳴状態を示す関数であり、この場合関数 F_g は 1 になる。関数 F_g は過度に歪んだ状態を現わしている。 G_0 は次の式で定義された。

$$G_0 \doteq \left(\frac{K_2(1 + \Theta^2 B/A)}{K_1(1 + \Theta^2 B^2/A^2)(-1 \pm 1/\alpha) + K_2(1 + \Theta^2 B/A)} \right)^2 \quad \text{---(6-56)}$$

ここで $\Theta = \tan \theta_0 = \tan(\theta_0 + W)$, θ_0 添字 B は Bragg 条件を意味している, パラメータ A と B は (6-36) 式で与えられている, α は流通パラメータで格子面 H の構造因子に比例する量である, 又 $K_1 = 1 + \Theta_B^2 B_B/A_B$, $K_2 = 1 + \Theta_B^2 B_B^2/A_B^2$ などである。関数 F_g は共鳴の減衰を示し次のように与えられる,

$$F_g = \frac{1 - \frac{(\chi - \xi_0)(f_x x^2 + f_z z^2)(1 + \Theta^2 B^2/A^2)}{\{(x - \xi_0)(1 + \Theta^2 B/A) + (f_x x^2 + f_z z^2) \Theta B/A\}^2}}{\left\{ 1 - \frac{f_x \cdot x^2 + f_z \cdot z^2 \Theta B/A}{\Gamma_B \cdot U' \cdot A \left(1 + \frac{\Theta^2 B^2}{A^2}\right) + (\xi_0 - x) \left(1 + \frac{\Theta B}{A}\right)} \right\}} \quad \text{---(6-57)}$$

$$\left. \begin{aligned} \text{ここで} \\ f_x = \frac{\alpha_{hx} e^{-i\varphi}}{16\pi K_x} \cdot \frac{\partial^2 \vec{h} \vec{U}}{\partial x^2}, \quad f_z = \frac{\alpha_{hz} e^{-i\varphi}}{16\pi K_z} \cdot \frac{\partial^2 \vec{h} \vec{U}}{\partial z^2}, \quad U' = \frac{2\pi K_x}{4\pi^2 K^2 (1 + \frac{i\varphi}{2})} \\ \Gamma_B = \frac{\xi_0 (1 + \Theta^2 B_B/A_B)(-1 \pm 1/\alpha)}{A_B U_B (1 + \Theta_B^2 B_B^2/A_B^2)} \end{aligned} \right\} \text{---(6-58)}$$

若し $\sqrt{G_0}$ が純虚数であれば共鳴波は存在しない, $\sqrt{G_0}$ の実数成分が^非共鳴時の Eikonal 表面からの微小変位を示す。 $\sqrt{G_0}$ の虚数部は波動エネルギーの吸収に対応すると思われるが、それについての検討は省略する。

今理想結晶を例に取り、反射格子ベクトル \mathbf{H} が Fig. 6-1 に示すごとく Z 軸の負方向を向いているとする、又計算を容易にするため、いくつかのパラメータを次のように設定した。格子面間隔 $d = \sqrt{2}/20$ (nm), 観測角は座標原系に対して $X=Z=0$ とし、入射波の波長は $\lambda = 0.1$ nm, Bragg角は $\theta_0 = \pi/4$ とする。 $\eta = +1$ for $\xi_0 < 0$ とする。又(6-30)式の虚数部分は次の形式を設定する:

$$\varphi_i = \varphi_{i0} + \varphi_{i2} W^2 \quad \text{---- (6-59)}$$

$$\text{従って、} \quad A \doteq 1 + 0.5e^{i\varphi} \quad \text{--- (6-60)}$$

$$B = 1 + 0.5e^{i\varphi} + \alpha_{hz} \frac{\lambda e^{i\varphi}}{d \cdot \sin(\theta_0 + W)} \doteq \left(\frac{3}{2} + \frac{\alpha_{hz}}{1+W} - \varphi_{i1} \left(\frac{1}{2} + \frac{\alpha_{hz}}{1+W} \right) \right) + i \varphi_{i2} \left(\frac{1}{2} + \frac{\alpha_{hz}}{1+W} \right) \quad \text{---- (6-61)}$$

実空間の波動の発散角に対応し、 K 空間の発散角も近似では2つ有り、 $W > 0$ と $W < 0$ について対応し、それぞれ異なる符号因子 η を持つので、 $W < 0$ 側の波に対して、 A と B は (6-60), (6-61) と反対符号になるが、(6-56)の関係には影響をおよぼさない。(6-59), (6-60), (6-61) などと (6-56) に代入して整理すると、

$$R\sqrt{G} \doteq \pm \alpha \frac{k_2}{k_1} \cdot \left(\frac{3}{2} - \frac{\varphi_{i1}}{2} \right) \frac{\left(\frac{3}{2} - \frac{\varphi_{i1}}{2} \right) (1-W)^2 + (1+W)^2 \left\{ \left(\frac{3}{2} - \frac{\varphi_{i1}}{2} \right) (1+W) + \alpha_{hz} (1 - \varphi_{i2}) \right\}}{\left(\frac{3}{2} - \frac{\varphi_{i1}}{2} \right) (1-W)^2 + (1+W)^2 \left\{ \left(\frac{3}{2} - \frac{\varphi_{i1}}{2} \right) (1+W) + \alpha_{hz} (1 - \varphi_{i2}) \right\}^2} \quad \text{---- (6-62)}$$

(6-62)式は $\alpha > 0$ に対し $0 < W < 0.01$ (rad), $-\alpha < 0$ に対し $-0.01 < W < 0$ の範囲で有効である。

特徴的には、(6-62)式は $|W|$ の小さい値で2つの共振の停留角を持つことである。結晶の角度が、

正確なBragg角から ΔW 外れると、 K 空間のEikonal上の^{二つの}波動角はLaue角を境にして対称的に曲線上を移動する。

これは2つの波動角の所起の仕方、伝統的なTC条件(tangential continuity)には従わない様

に見える。これは波動角の配置および動量がLaueの場合と全く異なるからである。これらの波動角の位置は、

TC条件からではなく、(6-35)及至(6-39)などの方程式と力学的パラメータで決り、結晶は干渉場を生成

する共振器の役割をしている事になる。 $R\sqrt{G}$ の最大値は実験と合わせるために $|\varphi_{i1}|$ に合わせるように α の値を決める。

次に注目すべき事柄は、(6-57)で示されるFig. 関数は結晶歪みが増すと f_x, f_z が増え、1より小さくなる。

もう一つの注目すべき点は F_g 関数は合成波の茶散角と観測角の距離に依存している事であり、これは共鳴領域の幅が θ を表現し得る可能性を有している。従って、 F_g 関数はモザイク結晶概念の一指標になり得る可能性を有していると言える。同様な考察は K_h 波についても成立する。

Ewald-Laue 理論によると、2波近似の場合 Bragg 条件の近傍で一偏光成分に関しては励起される波動数の数は4つあるのに対し、本論における手法では2つである。この違いは前ホ、 A 位相の位相ずれの波動数が Eikonal 上で共有され、単にその Eikonal 上の法線方向により区別されているからであらうと見做された。

6-7 分散面の試算

各パラメータの値は実験条件に依るが、パラメータに依りの値を用いて曲線群の形を試算した。

結晶は厚みが約 1mm , ϵ 以外の実験条件は前節の値を決定した。即ち $\lambda = 1\text{\AA}$, $\theta_B = \pi/4$, $d = \sqrt{2}/20\text{ nm}$ Bragg 条件がほとんど満足された共鳴状態に在るとす。 K 空間・茶散角は Laue 角の近くに無ければならぬ。 Bragg 角の外ホ W は大きく外ホても $|W| < 0.01$ の範囲に有ると考えられる。すなわち共鳴状態を決定する (6-62) 式は、 W の低次項のみが有効で高次項の寄与は無視される。

今仮りに $\alpha_{hz} = -0.75$, $\varphi_{10} = 2.25$, $\varphi_{12} = -100$ などの値を用いると式 (6-62) 式は次の形と

$$f(W) \equiv R\sqrt{G} \sim \frac{24.25W^2 - 0.28|W| - 0.75 \times 10^{-3}}{67W^2 - 0.844|W| + 0.515} \times (\pm \alpha) \quad \text{--- (6-62')}$$

関数の形は α_{hz} , φ_{10} , φ_{12} の値によって微妙に変わる事が知れた。(6-62') は $W \sim 6 \times 10^{-3}$ の

付近に極値を持つ Fig. 6-7 に大略の形を示した。 主に関数 $f(W)$ の形を決定するものは

上記のものすなわち W , α_{hz} , $\varphi_{10} = \varphi(x_{10}, S, W)$ である事が知れた。これらのパラメータは全て結晶自身と実験設定条件のみで決まる。最大の干渉強さを示す場合、従来の考え方では波動角と平均的位相面

(こゝでは Eikonal) の距離が大きい場合であった。従ってこの考え方に従えば (6-62) 式の停留角が

結晶内波動の K 空間における励起点、即ち散点となる。しかも (6-62) 式は W の正負に対し、

$W=0$ に対し対称の位置に極値を持つ。上記試算は物理的根拠に欠けるが、共鳴に寄与する

因子の目安が出来た事、並びに大略の曲線の形を探る上で意義があり、特記すべき事は、Fig. 6-7 は細い

部分は除き、傾向が Fig. 6-6 に見られる不連続形分散面に類似する事である。

6-8 境界条件批判

本論 6-4 節にて第一近似解に用いた Takagi 理論では、波動ベクトルの境界面接線方向成分の連続性 (TC 条件) が結晶内外の波を接続するために使用されている。この古典的境界条件は Born 及 Wolf (1959) により次のように記されている。

" Maxwell の方程式は電媒定数 ϵ 及び透磁率 μ で特徴づけられる媒質の物理的性質が連続である空間の領域にのみ定立されている。若しこれらの性質が境界面の前後で突然変化する場合、

\vec{E} , \vec{H} , \vec{B} 及び \vec{D} などのベクトル量も不連続的に変化する事が期待される。片や電荷 ρ と電流密度 \vec{j} はこの境界面の物理的性質の中へ解消して行くであろう"

故のごとき不連続面を横切る場合に要請される条件が TC 条件であり、次の 4 条件から成立し、

Fig. 6-8 に見られるごとく、境界面で Gauss の定理が成立する事を必要とする。

(ここで \vec{H} は磁界ベクトルであつて、結晶の格子ベクトルではない事に注意)

$$TC-1 : \quad \vec{B}_2 \cdot \vec{v}_{12} = \vec{B}_1 \cdot \vec{v}_{12} \quad (\text{from } \text{div } \vec{B} = 0)$$

$$TC-2 : \quad \vec{D}_2 \cdot \vec{v}_{12} = \vec{D}_1 \cdot \vec{v}_{12} + 4\pi\rho \quad (\text{from } \text{div } \vec{D} = 4\pi\rho)$$

$$TC-3 : \quad \vec{E}_1 \cdot \vec{t}_1 = -\vec{E}_2 \cdot \vec{t}_2 \quad (\text{from } \text{curl } \vec{E} - \frac{1}{c} \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = 0)$$

$$TC-4 : \quad \vec{v}_{12} \times \vec{H}_2 = \vec{v}_{12} \times \vec{H}_1 + 4\pi\vec{j}/c \quad (\text{from } \text{curl } \vec{H} - \frac{1}{c} \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} = 4\pi\vec{j}/c)$$

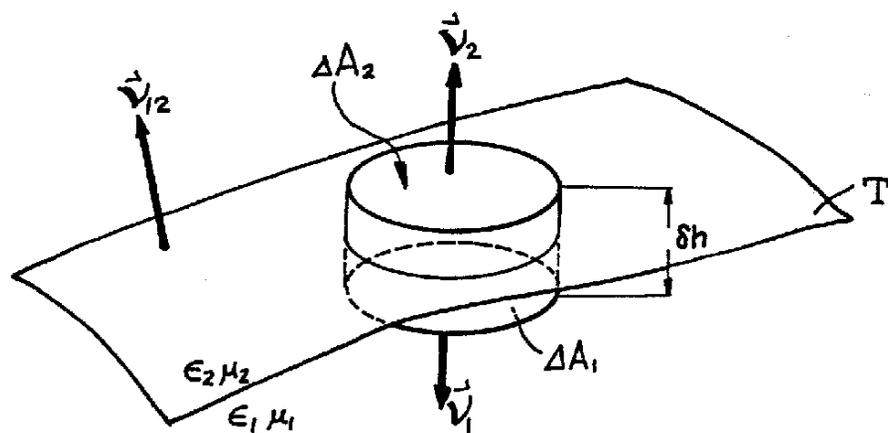
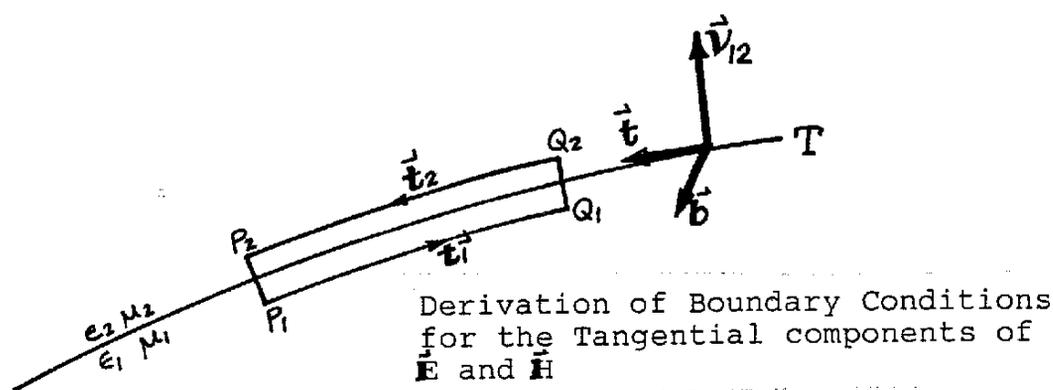


Fig.6-8 Conventional boundary condition

(T): discontinuity surface. A thin transition layer is defined, within which ϵ and μ vary rapidly but continuously from their values near T on one side to their value near T on the other. Within this layer small near-cylinder, bounded by a stockade of normals to T, roofed and floored by small areas ΔA_1 and ΔA_2 on each side of T. (Born & Wolf 1975). \vec{V}_1, \vec{V}_2 are normal vectors.

一般的に見れば、古典的な電磁波であるX線が真空中から結晶性物質へ入射或は反対に結晶から真空中へ出て行く場合、上記4条件全てが満足されねばならない。しかし伝統的なX線回折理論では、TC-3条件のみが適用され、他の条件は自動的に満足されるものとして閉却されている。自動的にこれ等条件が成立したと見た場合 Maxwellの理論によれば、すべての境界面に達した光子の波はこの条件を満足、

境界面の電子と相互作用をしなければならぬ、さもなければTC条件不成立となる。従来実験的に確立

されて来た衝突断面積の考へ方は古典的には成立せず、光子の波で励振された全ての電子は相互作用を行

う。仮りに、衝突断面積の事実にかゝる上記矛盾を無視してもTC-3条件だけでは満足に説明出来ない

X線回折にかゝる現象を見付けずは容易である。例えば、回折写真を記録する写真粒子の光電現象に

注目すると、感光銀粒子を電離するには一定のエネルギーを要すが、古典的にはポインティングベクトルが、銀粒子

内外の境界で確定せねばならず、TC-3条件以外も必須の条件となっている事が判る。TC条件は元来、

巨視的連続媒体に適用するために作られた概念である、従つて Fig. 6-8 に示す微小小体積が、原子、或は

電子一つに相当する位小さくすると矛盾が現われる。これは量子論的相いを必要とするからである。

従つてX線回折理論も適用するに當つて、TC条件は絶対不可欠と言ふのではなく、単に便義的に使用して相

応の成果を生んで来た考へ方であると思はせる。TC条件に代るものがあればTC条件に固着する必要はない事が

以上の事実関係からうかがえる。従来回折理論でTC条件を使用して数々の成功が報告された事実から

推し、回折現象は巨視的な一面も持つてゐるが、反面第5章で論じたごとく、量子論的現象に基礎

を置く事も事実である。即ち、回折理論に於ける境界条件は、その目的と対象現象によつて最も都合

の良いものを選ぶべきであるが、それ等の間に矛盾のない統一した思想が望まれる。

6-10 結 語

第一近似として Takagi の理論を使用し 一般的歪みの状態に在る結晶内の単色球面波による X 線回折理論が完成された。任意の歪んだ結晶状態に適用するために 修正 Riemann 関数が導入された。Takagi 理論における 電気偏位ベクトルの振中をより明確なものにするため、相補正関数及び位相関数 EIKONAL が導入された。Eikonol 関数を微分することにより 歪んだ結晶中の局所的波動ベクトルが導かれた。この結果結晶における波動場の中の基本解が完全に決定された。EIKONAL 関数を実空間及び位相空間で調べることにより、Bragg 散乱の共鳴的特徴が究められた。その結果円筒関数の持つ特異性が結晶波動場には存在しないことが認められた。この回折理論を展開する中で 共鳴度関数と共鳴減衰関数が導入された。これを用いて結晶中の X 線波の共鳴現象が論ぜられた。重要な TC 条件の矛盾が指摘された。特に結晶内の共鳴時における波動ベクトルの決定に際しては TC 条件ではなく、エネルギーの連続性が要請された。又境界問題にかける本質的問題は量子論的検討の中に入ることが指摘された。

第7章 総括

本論文は投射型X線顕微鏡を試作し、応用研究を行い、その過程で生じた技術的向
題を論じ、応用の過程で見出した白色X線の干渉現象に関する理論的向題を論じたものである。

第1章では、X線顕微鏡学の歴史を振り返り、向題点を鮮明にした。又現在までに発展してきたX線回折
理論と電磁理論の歴史を展望し干渉現象研究の立場を明確にした。第2章では、投射型X線
顕微鏡試作の過程で生じた技術的向題を解明し、応用性について述べた。第3章では、試作X
線顕微鏡を用いて、拡大ラウエ回折法(MLD)により、結晶試料を観察しMLD法応用方法を解
明すると共に白色X線干渉現象に内在している理論的未解決向題を抽出した。第4章では、
MLD法の写像関係を解明し、MLD法における回折X線強度の計算原理を示した。

第5章では、白色X線干渉現象を解析するために共変形式相対論的量子力学を導入し、結
晶内共鳴場の性質を論じた。第6章では、MLD法に摘要出来る新X線球面波理
論を展開した。これらの要旨を各章ごとにまとめると、

第1章では

- 1) X線顕微鏡が光学顕微鏡、電子顕微鏡と並んで広範囲な潜在能力を持つ高分
析手段になり得ることを述べた。基本的にはX線の透過力、及びその短い波長($\sim \text{\AA}$)がもたら
る高分解能性、そして物質元素及び結晶構造との相互作用から来る物質分析能力などがその
基本を成していることを述べ、その実現手段などが概説された。
- 2) X線顕微鏡法には三つの方法が有ること。一つは密着法でこれはX線の透過性のみ
を生かした方法で像拡大は他の手段に依存するが使用法が簡便であることを述べた。二つめ
は反射法で、これはX線に対する屈折レンズが出来ないために、鏡の全反射、又は
結晶のBragg反射を利用して結像法であるが、鏡面の製造技術に向題がある事

が指摘された。三つめは投影法で、X線光学的な像拡大を利用する方法であり、上述のX線潜在能力を実現する基本的条件をそろえている方法であることが述べられた。と同時に必要十分な点状X線源が未完成であることが示された。投影型を基本とし、X線マイクロアナライザー、走査型電子顕微鏡が発展したことが述べられた。

3) RöntgenのX線発見に始まり、現代までを三つの時期に分けてX線回折理論の発展を特徴づけた。一番目の開幕期は1900~1930年で古典X線回折理論が成立した時期である。Darwin, Ewald達の動力学的理論が提案されたが、結晶精製技術の未成熟などにより運動学的理論の主導的立場が確立したことを述べた。二番目は安定成長期で1930~1960年を指し、この間にLaueのX線回折理論が完成し、X線技術が広範な分野に活用された事を述べた。この間電磁理論は長足の進歩とし、共変形式の量子電磁力学が完成した事を述べた。三番目の胎動期は1960から現在に至る期間で、様々な理論的展開が試みられた事を述べた。これは結晶精製技術が成熟すると共に現われた事が述べられた。

4) 現代までの動力学的理論形式を電磁理論の方法で分類するとMaxwellの古典的方法と量子力学に根拠を置くものに大別出来ることを論じた。古典的方法は殆んどがLaueの分散面形式を用いるもので、Darwin, Ewaldの方法は使われていない事を述べた。Laueの方法に準拠するものは更に、平面波理論、球面波理論、光学理論などの形式に分けられ、各々が完全結晶及び不完全結晶に適用される形を持つことを述べた。ここで不完全結晶という言葉は弾性限度内を指すもので、過度の歪の入った結晶に適用出来る動力学理論は完全に居らず、今では依然として、運動学的散乱理論とモザイク概念が生きていることを述べた。量子力学的理論形式は従来まで三形式があった。その一はMolièreの古典的量子力学に準拠した

もの、その二は Ohtsuki の相対論的場の形式に準拠したもの、その三は Askin & Kuriyama の非相対論的量子力学に準拠したもの などがあつた。しかし、いかに理論展開が完成されて居らず、充分な普及に至っていない事を概説した。

第2章

- 1) ハビオンファイラメント形式の熱電子放射型電子銃の光輝度は $\sim 1 \times 10^5$ (A/cm²/str) であつて、分解能 $1 \mu\text{m}$ 以下の X 線顕微鏡には明るさが不足すると論じた。冷陰極電界放出型の電子銃は、単結晶ポイントカソードが必要で、安定使用真空度は $10^{-8} \sim 10^{-9}$ Torr, 熱電界放出の場合は $10^{-7} \sim 10^{-8}$ Torr の真空度が必要である事。電子銃の光輝度は $\sim 10^{11}$ (A/cm²/str) であるが安定放出電流は $100 \mu\text{A}$ 程度であることを述べた。この電子銃を X 線顕微鏡に利用するには、開口角の大きい電子光学系が必要であると論じた。
- 2) ハビオンファイラメント型電子銃を用いるための電子光学系を論じた。Coslett-Nixon 形式の二段縮小レンズ系を作り、軸合せの手法、電子線焦点の縮小法などを論じた。電磁レンズ式電子光学系のための高安定度電源装置設計の一般論について述べた。その結果、 $0.1 \mu\text{m}$ の X 線像分解を得るためには 高圧電源電圧安定度 3×10^{-4} , レンズ励磁電流安定度 1.6×10^{-4} が必要であることを示した。
- 3) X 線分解能を決定するのは、X 線源の明るさ、X 線源サイズ、及びフレネル干渉現象であることを論じた。明るさの不足から来る写真フィルムを用いた長時間露光による分解能の低下は、写真に代る光電変換装置の発展が解決法になり得ることを述べた。X 線源サイズの問題は X 線ターゲット中での電子の拡散現象に起因するもので、物理的には有限な限界の存在すること、又、フレネル干渉現象も物理的起源を有するが、これは撮景の条件に依る事などを述べた。

又、後二者による分解能低下は、電子計算機による画像処理法などによる改善の方法もある事などを述べた。

第3章

- 1) MLD法に用いる X線源としては、電子線収束形の従来臭 X線源が有利であることが述べられ、X線ターゲットの溶融限度が検討された。X線出力を限定しているものは、ターゲット物質の熱的性質ではなく、電子銃の電子放射能力の才に問題がある事を論じた。
- 2) MoO_3 結晶への MLD法の応用では結晶中の非晶質物質の観察が行われ、多数の反射面の同時観察による MLD法が、結晶内現象を観察する有力な方法であることを示した。
- 3) 虫果旋状銅ホイスカーの観察では、電子顕微鏡が観察不可能な厚さのホイスカー内に存在する転位を確認し、従来ホイスカー成長過程の問題とされている、転位の機能について一知見を与える事になった事を論じた。
- 4) Si単結晶中の *pendellösung* 干渉条の観察では、又由線形干渉条を見出し、これが白色 X線の干渉によるものであることを論じた。

第4章

- 1) MLD法の複雑な写像構造を、球面三角法を用いた幾何学で解明し、試料上の臭と回折像上の臭との間に一対一対応が行われていることを証明し、又 MLD像の、像回転の機構を明らかにした。
- 2) MLD像の像拡大率の場所依存性を計算により示し、拡大率を計算により求めた。
- 3) MLD像 X線強度を求め計算法を示し、二つのエンボリューション関数の必要性を論じた。

第5章

- 1) X線回折現象を共変形式の相対論的量子力学の枠内で論じられた。この結果、結晶に共鳴場があることを示し、回折現象は二段階の共鳴プロセスで生じていることを示した。この結果白色X線の干渉及びX線偏向方向の回折の原因などの解明の可能性が論ぜられた。
- 2) 光子-電子の相互作用は、粒子的衝突関係により生じることが、湧出場における相互作用の表現は場の形式の干渉過程を表わしていることが示された。
- 3) 共鳴場の相互作用の結果は、萬能共振曲線に似た形をとり、共鳴のQ因子が定義された。この因子に関するものは結晶のBragg条件と入射波モード及び結晶内の吸収的性質であることが示された。
- 4) 動的構造因子が定義され、この中には、電子 \leftrightarrow 電子，正孔 \leftrightarrow 正孔，電子 \leftrightarrow 正孔などの形の励起関係並びに光子の吸収時の消滅，光子放出などのプロセスが包含されていることが示された。この動的構造因子は、従来使われてきた結晶の構造因子を包含することが論ぜられた。
- 5) 古典的な源の分散方程式に対応する理論形式が示されたが、これは確率的期待値の形を取ることを示した。又高次擾動と低次擾動の関係についても論じられた。

第6章

- 1) 高木理論を基礎として、新球面波理論を構築したと論じられた。この中で、X線波場が場におけるインパルス応答であるRiemann関数を発展させ、係数リーマン関数が導入された。この結果、任意の歪状態に適用出来るインパルス応答関数が得られたことが示された。
- 2) 振中補正関数、並びに位相関数パイコナルを用いて、高木方程式を補正し、高木方程式に於いて含まれていた位相項をみよびき出すことに成功し、高木方程式の歪状態変化に対する

適応性の拡張に成功したことが示された。

- 3) 位相関数アノールを解き、Bragg条件下の結晶内共鳴場における共鳴振動の分散により、位相関係の振動量が考察された。高木方程式の2波近似において、従来基本解の一つが発散していた事実を説明し、振動量の考察の結果、この特異性の除去が可能であることが示された。
- 4) 位相関数アノールの共鳴角付近の変化が論ぜられ、共鳴度関数と共鳴減衰関数を導入し、新分散面の形が論ぜられた。分散面は、ラウエ角付近でアノール関数が変形することから生じ、従来の双曲面形分散面と異なる形が示された。又ここでTC条件が不要であることが示された。

以上各章で得られた結果をまとめた。

将来の展望として以下の三点が指摘し得る。

- 1) X線顕微鏡は依然その潜在能力が期待されている。それを実現するためのいろいろの基礎技術が進展している事情が展望された。ことに、開口度の高い電子光学系が重要であるように思われた。又X線観察も写真フィルム法には限界があり、将来は二次元X線カウンター法のごとき光電変換装置が応用され、それを操作する電子計算機が組み込まれた像再生装置が用いられる事になるであろう。これにより、X線観察照度の低下が解決されると期待される。
- 2) MLD法は同時多数の反身面が得られ、これは他の回折法にはない特徴で、今後ますます発展することが期待出来ると思われた。写像機構が明らかになったので、今後は電子計算機を用いて、同時回折による立体的結晶像の解析が可能になることが期待される。
- 3) X線回折理論は今後古典論の枠を超えた、相対論形式が一般化して行くものと思われる。SORなどの強力なX線源が開発された現代では古典論の枠を超えた現象が生れて来ることが予想されるからである。

Reference

- (1) Afanasev A.M. and Kohn V.G., 1971, Acta Cryst., A27,421.
 (2) Annaka S., Kohra K., and Ando M., private communication.
 (3) Aristov V.V., and Shulakov E.V., 1975, J.Appl.Cryst., 8,445.
 (4) Aristov V.V., Shekhtman V.Sh., and Shmyt'ko I.M., 1976, Kristallografiya, 21,50.
 (5) Aristov V.V., Shmyt'ko I.M., Shulakov E.V., 1976, Kristallografiya, 21,351.
 (6) Aristov V.V., Polovinkina V.I., Afanas'ev A.M., and Kohn V.G., 1980, Acta Cryst., A36,1002.
 (6a) Aristov V.V. and Shulakov E.V., 1982, Acta Cryst., A38,454.
 (7) Ashkin M. and Kuriyama M., 1966, J.Phys.Soc.Japan, 21,1549.
 (8) Authier A., 1966, J.de Phys., 27,57.
 (9) Authier A. and Sauvage M., 1966, J. de Phys., 27,c3-137.
 (10) Authier A., 1967, Advances in X-Ray Analysis, 9,481.
 (11) Authier A., 1968a, Advances in X-Ray Analysis, 10,9.
 (12) Authier A., 1968b, Phys.Stat.Sol., 27,77.
 (13) Authier A., Milne A.D., and Sauvage M., 1968, Phys.Stat.Sol., 26,469.
 (14) Authier A., Malgrange C., and Tournarie M., 1968, Acta Cryst., A24,126.
 (15) Authier A. and Simon D., 1968, Acta Cryst., A24,517.
 (16) Authier A. and Balibar F., 1970, Acta Cryst., A26,647.
 (16a) Archard, G.D. and Mulvey, T., 1963, J.Appl.Phys., 14,626.
 (16b) Ardenne M.von., 1939, Naturwissenschaften, 27,458.
 (17) Balibar F. and Authier A., 1967, Phys. Stat. Sol., 21,413.
 (18) Balibar F., 1969, Acta Cryst., A25,650.
 (19) Balibar F. and Malgrange C., 1975, Acta Cryst., A31,425.
 (20) Balibar F., Epelboin Y. and Malgrange C., 1975, Acta Cryst., A31,836.
 (21) Balibar F., Chukhovskii F.N. and Malgrange C., 1983, Acta Cryst., A39,387.
 (21a) Bethe H., 1928, Ann.d.Physik, 87,55.
 (22) Boettinger W.J., Burdette H.E. and Kuriyama M., 1976, Rev.Sci. Instr. 47,906.
 (23) Bonse U., 1964a, Zeit. f. Physik, 177,385.
 (24) Bonse U., 1964b, Zeit. f. Physik, 177,529.
 (25) Bonse U., 1964c, Zeit. f. Physik, 177,543.
 (26) Bonse U., 1965a, Appl. Phys. Letters, 6,155.
 (27) Bonse U. and Hart M., 1965b, Zeit. f. Physik, 188,154.
 (28) Bonse U. and Kaat E., 1971, Zeit. f. Physik, 243,14.
 (28a) Borrmann & Hildebrandt, 1959, Zeit.f.Physik, 156,189.
 (29) Born M. and Heisenberg W., 1923, Zeit.f.Physik, 14,44.
 (30) Born M., Heisenberg W. and Jordan P., 1925, Zeit. f.Physik, 35,557.
 (31) Born M. and Jordan P., 1925, Zeit.f.Physik, 33,479.
 (32) Born M., 1926, Zeit.f.Physik, 37,863.
 (33) Born M., 1926, Zeit.f.Physik, 38,803.
 (34) Born M., 1926, Zeit.f.Physik, 40,167.
 (35) Born M., 1927, Nature 119,354.
 (36) Born M. and Oppenheimer R., 1927, Ann.d.Physik, 84,458.

- (37) Born M. and Jordan P., 1925, *Zeit.f.Physik*, 34,858.
- (37a) Born M. and Wolf E., 1975, Principle of Optics 5-th edi., Pergamon press.
- (38) Bragg W.H., 1912, *Nature* 90,360.
- (39) Bragg W.L., 1912, *Nature* 90,410.
- (40) Bragg W.L., 1913, *Proc. Cambr. Phil. Soc.*, 17,43.
- (40a) Bragg W.L., James R.W. and Bosanquet C.H., 1921, *Phil.Mag.*, 51,309;52,1.
- (41) Bragg W.L., 1970, *Acta Cryst.*, A26,171.
- (42) Bursill L.A., 1969, *Proc. Roy., Soc.*, A311,267.
- (42a) Berremann, D.W., 1955, *R.S.I.*, 26,1048.
- (42b) Brenner, S.S., The Art and Science of Growing Crystal, John Wiley & Sons Inc. N.Y. 1963.
- (42c) Baez A.V., & Husein M.A. El-sum, 1956, proc. 1st Int.Symp. X-ray Microscopy and Microradiography. p347.
- (43) Chukhovskii F.N. and Stol'berg A.A., 1970, *Phys.Stat.Sol.*, 41,815.
- (44) Chukhovskii F.N. and Perstnev I.P., 1972, *Acta Cryst.*, A28,467.
- (45) Chukhovskii F.N. and Stol'berg A.A., 1973, *Sov.Phys.JETP.*, 37,525.
- (46) Chokhovskii F.N., 1974, *Sov.Phys.Crystallogr.*, 19,301.
- (47) Chokhovskii F.N. and Petrashen P.V., 1977, *Acta Cryst.*, A33,311.
- (48) Chokhovskii F.N., Gablielyan K.T., and Petrashen P.V., 1978, *Acta Cryst.*, A34,610.
- (49) Cohen G.G. and Kuriyama M., 1978, *Phys.Rev.Letters*, 40,957.
- (49a) Cosslett, V.E., Engström, A. and Pattee, H.H., 1957, X-ray Microscopy and Microradiography Proc. 1st Int.Symp.(cambridge) Academic Press Inc.
- (49b) Cosslett, V.E. and Nixon, W.C., X-ray Microscopy, 1960, Cambridge university press.
- (49c) Cosslett V.E., 1952, *Proc.phys.Soc.*, B65,
- (49d) Cosslett V.E. & Duncumb P., 1956, *Nature, Lond*, 177,1172.
- (49e) Crew A.V., et al., 1968, *Rev.Sci.Inst.*, 39,576.
- (49f) Cauchois Y., 1946, *C.R.Acad.Sci., Paris*, 223,82.
- (49g) Castaing P., 1951, *Ph.D. Thesis, Paris*.
- (49h) 牛川純一, 1974, *応用物理*, 43,230.
- (49i) CZERMAK P, 1897, *Ann. Phys., Lpz.* 60,760.
- (50) Darwin C.G., 1914a, *Phil.Mag.*, 27,315.
- (51) Darwin C.G., 1914b, *Phil.Mag.*, 27,675.
- (52) Darwin C.G., 1922, *Phil.Mag.*, 43,800.
- (53) Drawin C.G., 1927a, *Proc.Roy.Soc.*, 115A,1. .
- (54) Darwin C.G., 1927b, *Proc.Roy.Soc.*, 116A,227.
- (55) Darwin C.G., 1928a, *Proc.Roy.Soc.*, 118A,654. .
- (56) Darwin C.G., 1928b, *Proc.Roy.Soc.*, 120A,631.
- (56a) Debye P., 1914, *Ann.d.Physik*, 43,49.
- (57) Dirac P.A.M., 1925, *Roy.Soc.Proc.*, A109,642.
- (58) Dirac P.A.M., 1926a, *Roy.Soc.Proc.*, A110,561.
- (59) Dirac P.A.M., 1926b, *Roy.Soc.Proc.*, A111,281.
- (60) Dirac P.A.M., 1926c, *Roy.Soc.Proc.*, A111,405.
- (61) Dirac P.A.M., 1926d, *Roy.Soc.Proc.*, A112,661.
- (62) Dirac P.A.M., 1927a, *Zeit.f. Physik*, 44,585.
- (63) Dirac P.A.M., 1927b, *Roy.Soc.Proc.*, A113,621.

- (64) Dirac P.A.M., 1927c, Roy.Soc.Proc., A114,243.
 (65) Dirac P.A.M., 1927d, Roy.Soc.Proc., A114,710.
 (66) Dirac P.A.M., 1928a, Roy.Soc.Proc., A117,351.
 (67) Dirac P.A.M., 1928b, Roy.Soc.Proc., A117,610.
 (68) Dyson F.J., 1949, Phys.Rev., 75,486.
 (68a) Drummond,D.C., 1950, F.R.Micr.Soc., 70, 132.
 (68b) Dyson J., 1952, Proc.Phys.Soc., B65,580.
 (68c) Dibble & Dumond, 1963, J.Ultrastructur, 9,419.
- (69) Ewald P.P. and Friedrich W., 1914, Ann.d.Physik., 44,1183.
 (70) Ewald P.P., 1916a, Ann.d.Physik, 49,1.
 (71) Ewald P.P., 1916b, Ann.d.Physik, 49,117.
 (72) Ewald P.P., 1917a, Ann.d.Physik, 54,519.
 (73) Ewald P.P., 1917b, Ann.d.Physik, 54,557.
 (74) Ewald P.P., 1920a, Ann.d.Physik, 64,253.
 (75) Ewald P.P., 1920b, Zeits.f.Physik, 2,332.
 (76) Ewald P.P., 1921, Zeit. Kristallogr., 56,129.
 (77) Ewald P.P., 1924, Zeit.f.Physik., 30,1.
 (78) Ewald P.P., 1925, Physik. Zeitschr., 26,29.
 (79) Ewald P.P., 1926, Physik. Zeitschr., 27,182.
 (80) Ewald p.p., 1937, Zeit. Kristallogr., A97,1.
 (81) Ewald P.P., 1958, Acta Cryst., 11,888.
 (82) Ewald P.P. and Heno Y., 1968, Acta Cryst., A24,5.
 (83) Ewald P.P., 1969, Acta Cryst., A25,103.
 (84) Ewald P.P., 1979, Acta Cryst., A35,1.
 (85) Engström A., Cosslet V. and Pattee H., 1960, X-Ray Microscopy and Microanalysis Proc.2nd.Int.Symp.(Stokholm) Elsevier Publishing Company.
- (86) Epelboin Y., 1979, Acta Cryst., A35,38.
 (86a) Eshelby J.D., 1961, Phil. Mag., 6,953.
- (87) Feynman R.P., 1948a, Rev.Modern Phys., 20,367.
 (88) Feynman R.P., 1948b,Phys.Rev., 74,1430.
 (89) Feynman R.P., 1949, Phys.Rev., 76,749.
 (90) Feynman R.P., 1950, Phys.Rev., 80,440.
 (91) Feynman R.P., 1951, Phys.Rev., 84,108.
 (92) Fock V., 1932, Zeit.f.Physik, 75,622.
 (93) Fujiwara T. and Takeshita I., 1941, Hiroshima uiv.Kiyo, p93.
 (94) Fujiwara T., Dohi S. and Sunada J., 1964, Japan J.Appl.Phys., 3,129.
 (94a) Fujiwara t., 1926, マツダ"研究"争報, 1, No.2
 (94b) 藤原 武夫, 1928, 京大理学部紀要, 11, 283
 (94c) 藤原 武夫, 小野山 伝六, 1939, 広島文理大理学部紀要 9, 115.
- (95) Fukuda H., Miyamoto Y. and Tomonaga S., 1949, Prog.Theor.Phys., 4,47.
 (96) Fukuda H., Miyamoto Y. and Tomonaga S., 1949, Prog.Theor.Phys., 4,121.
 (96a) Fock V., 1930, Zeit.f.Physik, 61,126.
 (96b) Fermi E., 1928, Zeit.f.Physik, 48,73.
- (97) Goldberger M.L., 1955, Phys.Rev., 97,508.
 (98) Guinier A. and Tennevin J., 1949, Acta Cryst., 2,133.

- (99) Hart M., 1978, Phil.Mag., 38,41.
- (100) Hart M. and Rodrigues A.R.D., 1979, Phil.Mag., 40,149.
- (101) Hart M. and Rodrigues A.R.D., 1981, Phil.Mag., 43,321.
- (102) Hashimoto H., 1954, J.Phys.Soc.Japan, 9,150.
- (103) Hashimoto H. and Mannami M., 1960, Acta Cryst., 13,363.
- (104) Hashimoto H. Kozaki S. and Ohkawa T., 1965, Appl.Phys.Lett. 6,1.
- (105) Hashimoto H. Kozaki S. and Ohkawa T., 1966, 6th int.Cong.f.Electron Microscopy, Kyoto.
- (106) Hashimoto H., Urai S., Yotsumoto H. and Sawamori J., 1970, Septieme Congr. Int. de Microscopie Electronique, Grenoble.
- (107) Hattori H., Kuriyama H., katagawa T. and Kato N., 1965, J.Phys.Soc.Japan, 20,988.
- (108) Hattori H., Kuriyama H. and Kato N., 1965, J.Phys.Soc.Japan, 20,1047.
- (109) Hayakawa S., Miyamoto Y. and Tomonaga S., 1947a, J.Phys.Soc.Japan, 2,172.
- (110) Hayakawa S., Miyamoto Y. and Tomonaga S., 1947b, J.Phys.Soc.Japan, 2,199.
- (111) Heisenberg W., 1925, Zeit.f.Physik, 33,879.
- (112) Heisenberg W. and Jordan P., 1926, zeit.f.Physik, 37,263.
- (113) Heisenberg W., 1926a, Zeit.f.Physik, 38,411.
- (114) Heisenberg W., 1926b, Zeit.f.Physik, 39,499.
- (115) Heisenberg W., 1926c, Zeit.f.Physik, 40,501.
- (116) Heisenberg W., 1927a, Zeit.f.Physik, 41,239.
- (117) Heisenberg W., 1927b, Zeit.f.Physik, 43,172.
- (118) Heisenberg W., 1928, Zeit.f.Physik, 49,619.
- (119) Heisenberg W. and Pauli W., 1929a, Zeit.f.Physik, 56,1.
- (120) Heisenberg W. and Pauli W., 1929b, Zeit.f.Physik, 59,168.
- (121) Heno Y. and Ewald P.P., 1968, Acta Cryst., A24,16.
- (122) Hildebrant G., 1959a, Zeit.f.Physik, 112,312.
- (123) Hildebrant G., 1959b, Zeit.f.Physik, 112,340.
- (124) Hrdy' J., Krousky E. and Renner O., 1979, Phys.Stat.Sol. (a)53,143.
- (124a) Hartree D.R., 1928, Proc.camb.Phil.Soc., 24,89;111;426.
- (124b) Hibi,T., 1956, J. Elecrtionmicroscopy, 4,10.
- (124c) Henke B.L. & Dumond J.W.M., 1955, J.Appl.Phys., 26,912.
- (124d) Hink W., 1956, X-ray Microscopy and Microradiography, proc. 1st Int.Sympo., N.Y. Academic press.
- (125) Indenbom V.L. and Chukhovskii F.N., 1972, Sov.Phys.USPEKHI. 15,298.
- (126) Indenbom V.L. and Chukhovskii F.N., 1972, Sov.Phys.Crystallogr. 16,972.
- (127) Indenbom V.L. and Chukhovskii F.N., 1974, Sov.Phys.Crystallogr. 19,19.
- (128) Ishida H., Miyamoto N., Ishikawa T. and Kohra K., 1982, Zeit.Naturforsch 37a,650.
- (129) Ito D., Koba Z. and Tomonaga S., 1947, Prog.Theor.Phys., 2,216.
- (130) Ito D., Koba Z. and Tomonaga S., 1948a, Prog.Theor.Phys., 3,267.
- (131) Ito D., Koba Z. and Tomonaga S., 1948b, Prog.Theor.Phys., 3,325.

- (132) James R.W., Waller I. and Hartree D.R., 1927, Roy.Soc.Proc., 118A,334.
- (133) Jordan P., 1932, Zeit.f.Physik, 75,648.
- (133a) Jeavons, A., et al., 1980, Nucl. Instr.and Metho., 176,89.
- (133b) Jentzsch F., 1929, Phys.Z., 30,268.
- (134) Kachamin A.N., 1971, Sov.Phys.Crystallogr., 15,655.
- (135) Kambe K., 1965, Zeit.Naturforsch 20a,770.
- (136) Kambe K., 1968, Zeit.Naturforsch., 23a,25.
- (137) Kaneshawa S. and Tomonaga S., 1948a, Prog.Theor.Phys., 3,1.
- (138) Kaneshawa S. and Tomonaga S., 1948b, Prog.Theor.Phys., 3,101.
- (139) Katagawa T. and Kato N., 1974, Acta Cryst., A30,830.
- (140) Kato N., 1958, Acta Cryst., 11,885.
- (141) Kato N. and Lang A.R., 1959, Acta Cryst., 12,787.
- (142) Kato N., 1960, Acta Cryst., 13,349.
- (143) Kato N., 1961a, Acta Cryst., 14,526.
- (144) Kato N., 1961b, Acta Cryst., 14,627.
- (145) Kato N., 1963a, Acta Cryst., 16,276.
- (146) Kato N., 1963b, Acta Cryst., 16,282.
- (147) Kato N., 1963c, J.Phys.Soc.Japan, 18,1785.
- (148) Kato N., 1964a, J.Phys.Soc.Japan, 19,67.
- (149) Kato N., 1964b, J.Phys.Soc.Japan, 19,971.
- (150) Kato N. and Ando Y., 1966, J.Phys.Soc.Japan, 21,964.
- (151) Kato N., 1968a, J.Appl.Phys., 39,2225.
- (152) Kato N., 1968b, J.Appl.Phys., 39,2231.
- (153) Kato N., 1969, Acta Cryst., A25,119.
- (154) Kato N., 1976a, Acta Cryst., A32,453.
- (155) Kato N., 1976b, Acta Cryst., A32, 458.
- (156) Kato N., 1979, Acta Cryst., A35,9.
- (157) Kato N., 1980a, Acta Cryst., A36,171.
- (158) Kato N., 1980b, Acta Cryst., A36,770.
- (159) Kato N., 1980c, Acta Cryst., A36,763.
- (160) Klein O., 1926a, Zeit.f.Physik, 37,895,
- (161) Klein O., 1926b, Zeit.f.Physik, 41,407.
- (162) Klein O., 1927, Zeit.f.Physik, 46,188.
- (163) Klein O., 1928, Zeit.f.Physik, 53,157.
- (164) Klein O. and Nishina Y., 1928, Zeit.f.Physik, 52,853.
- (165) Koba Z., Tati T. and Tomonaga S., 1947a, Prog.Theor.Phys., 2,101.
- (166) Koba Z., Tati T. and Tomonaga S., 1947b, Prog.Theor.Phys., 2,198.
- (167) Koba Z. and Tomonaga S., 1948a, Prog.Theor.Phys., 2,218.
- (168) Koba Z. and Tomonaga S., 1948b, Prog.Theor.Phys., 3,290.
- (169) Kohra K. and Sasaki T., 1983, Nuclear Instr.Meth., 208,23.
- (169a) Kohra K. 1960, (Japanese) X-Ray Crystallography, edi., by Nitta I., Maruzen Tokyo.
- (169b) 高良和武, 菊田惺志, 1967, 応用物理, 36, 88.
- (170) Kohn V.G., 1972, Sov.Phys.Solid State, 13,2495.
- (171) König H., 1951, Zeit.f.Physik, 130,483.
- (172) Kozaki S., Ohkawa T. and Hashimoto T., 1968, J.Appl.Phys., 39,3968.
- (172a) Kozaki,S., Hashizume H. and Kohra K., 1972, Japan J.Appl.Phys., 11,1514.
- (173) Kramers H.A. and Heisenberg W., 1924, Zeit.f.Physik, 31,681.

- (174) Kuriyama M., 1967a, Phys.Stat.Sol., 24,743.
 (175) Kuriyama M., 1967b, J.Phys.Soc.Japan, 23,1369.
 (176) Kuriyama M., 1968a, J.Appl.Phys., 39,2162.
 (177) Kuriyama M., 1968b, J.Phys.Soc.Japan, 25,846.
 (178) Kuriyama M., 1969a, Acta Cryst., A25,682.
 (179) Kuriyama M., 1969b, J.Appl.Phys., 40,1697.
 (180) Kuriyama M., 1970a, Acta Cryst., A26,56.
 (181) Kuriyama M., 1970b, Acta Cryst., A26,667.
 (182) Kuriyama M., 1971, Acta Cryst., A27,634.
 (183) Kuriyama M., 1972, Acta Cryst., A28,588.
 (184) Kuriyama M., 1973, Zeit.Natur., 28a,622.
 (185) Kuriyama M. and Early J.G., 1974, Acta Cryst., A30,525.
 (186) Kuriyama M., Early J.G. and Burdette H.E., 1974,
 J.Appl.Cryst., 7,535.
 (187) Kuriyama M., 1975, Acta Cryst., A31,774.
 (187a) Kohler M., 1933, Ann.d.Physik, 5,18.
 (187b) Kendrew J.C. et al., 1958, Natur, 181,662.
 (187c) Krishan & Peneva, 1968, J.A.P., 39,5474.
 (187d) Kirkpatrick P. & Baez A.V., 1948, J.Opt.Soc.Am., 38,766.
 (187e) Kossel W. et al., 1935, Z.Phys., 94,139.
 (188) Friedrich W., Knipping P. and Laue M.v., 1913, Ann.d.Physik,
41,971.
 (189) Laue M.V., 1913, Physik.Zeitschr., 14,421.
 (190) Laue M.v., 1931, Erg.Exact Naturw., 9,133.
 (191) Laue M.v., 1926, Zeit.f.Kristallogr. 64,115.
 (192) Laue M.v., 1952, Acta Cryst., 5,619.
 (193) Laue M.v., 1953, Acta Cryst., 6,217.
 (194) Lang A.R., 1958, J.Appl.Phys., 29,597.
 (195) Lang A.R., 1959, Acta Cryst., 12,249.
 (196) Litzman O. and Janac'ek Z., 1974, Phys.Stat.Sol., 25,663.
 (196a) Liebmann, and Grad, 1951, Phys.Soc., B64,956.
 (196b) Langmuir, D.B., 1973, Proc.Instr.Radio.Engrs., N.Y. 25,977.
 (196c) Long, 1958, J.Sci.Instr., 35,323.
 (196d) Lonsdale K., 1947, Phil.Trans.Roy.Soc., 240,219.
 (196e) Lattiere H.J., et al., 1965, Memo.Sci.Rev.Metall., LXIV,No.2.
 (196f) Liebhafsky H.A., et al., 1960, Proc. 2nd,Intn.Symp. on X-ray
 microscopy Microanalysis, (stockholm), p.321.
 (197) Martin P.C. and Schwinger J., 1959, Phys.Rev., 115,1342.
 (198) Mitra G.B. and Mathur B.K., 1981, Acta Cryst., A39,439.
 (199) Molière G., 1939, Ann.d.Physik, 35,272.
 (200) Molière G., 1939, Ann,d.Physik, 35,297.
 (201) Molière G., 1939, Ann,d.Physik, 36,262.
 (201a) 丸勢道, II口, 1953, 電子顕微鏡, 3,17.
 (201b) 丸勢道, 原行一, 榊米一郎, 1957, 電子顕微鏡 6,18.
 (201c) 丸勢道, 1957, 電子顕微鏡 6,148.
 (201d) Morimoto, H. and Uyeda, R., 1963, Acta Cryst., 16,1107.
 (201e) Montel M., 1953, Rev.Opt.Theor.Instr., 32,585.
 (201f) Montel M., 1954, Optica Acta, 1,117.
 (201g) Mcgee J.F., 1955, Phys.Rev., 98,282.
 (201h) Malsch F., 1939, Naturwissenschaften, 27,854.
 (202) Nishina Y. and Tomonaga S., 1934, Japan Jour.Phys., 9,35.
 (203) Nishina Y., Tomonaga S. and Sakata S., 1934, Sci.Paper of
 Inst. Phys-Chem.Res., 24,supl.18,7.
 (196G) Ladd W.A., Hess W.M., & Ladd M.W., 1956, SCIENCE, 123,370;
 Ladd W.A. & Ladd, M.W., 1957, X-Ray Microscopy and Microradiography, P383.

- (203a) Nixon W.C., 1955, Proc.Roy.Soc., A232,475.
 (203b) 中山了, 早坂東壘, 1977, 応用物理, 46, 758.
 (203c) Nittono O. and agakura S., 1969, Japan J.A.Phys., 8,1180.
- (204) Ohtsuki Y.H., 1964, J.Phys.Soc.Japan, 19,2285.
 (205) Ohtsuki Y.H. and Yanagawa S., 1966, J.Phys.Soc.Japan, 21,326.
 (206) Ohtsuki Y.H. and Yanagawa S., 1966, J.Phys.Soc.Japan, 21,502.
 (206a) Ong, S.P., & Le pool, J.B., 1957, J.Appl.Phys., 28,1368.
 (206b) Ong, Sing poen, 1959, D.Tech.Sci. Thesis Delft.
 (207) Ong Sing Poen, and Le Poole J.B., 1958, Appl.Sci.Res., B7,233.
 (207a) Ohkawa T., and Hashimoto H.,Phys. Stat. Sol.,1984, (a)84, no.2.
 (208) Patel J.R., 1979, Acta Cryst., A35,21.
 (209) Penning P. and Polder D., 1961, Philips Res.Repts., 16,419.
 (210) Polder D. and Penning P., 1964, Acta Cryst., 17,950.
 (211) Petrashen P.V., 1974, Sov.Phys.Solid.State, 15,2096.
 (212) Petrashen P.V., Chukhovskii F.N., 1976, Sov.Phys.JETP., 42,243.
 (213) Pinsker Z.G. and Chukhovskii F.N., 1975, Sov.Phys.Cristallogr., 20,306.
 (214) Petrashen P.V. and chukhovskii F.N., 1976, Sov.Phys.Crystallogr., 21,152.
 (215) Petrashen P.V., Chukhovskii F.N. and Shulpina I.L., 1980, Acta Cryst., A36,287.
 (215a) Pattee H.H., J.Opt.Soc.Amr., 1953, 43,61.
 (215b) Pattee H.H., 1958, Science, 128,977.
 (215c) Pattee H.H., 1953, Ph.D. Thesis, Stanford Univ., USA.
 (215d) Pattee H.H., 1957, X-Ray Microscopy & Microradiography, P135; P367.
 (216) Reibedanz H., 1971, Zeit.Angew.Physik, 32,300.
 (217) Röntgen W.C., 1898, Ann.d.Physik, 64,1.
 (217a) Rovinsky B.M., Lutsau V.G. & AVDEYENKO A.T., 1957, X-Ray Microscopy & Microradiography, P269.
 (218) Saka T., Katagawa T. and Kata N., 1972a, Acta Cryst., A28,102.
 (219) Saka T., Katagawa T. and Kato N., 1972b, Acta Cryst., A28,113.
 (220) Saka T., Katagawa T. and Kato N., 1973, Acta Cryst., A29,192.
 (221) Sauvage M., Petroff J.F. and Skalicky P., 1977, Phys.Stat.Sol., (a)43,413.
 (222) Sharma R.B., 1969, J.Appl.Phys., 40,1866.
 (223) Skalicky P. and Malgrange C., 1972, Acta Cryst., A28,501.
 (224) Slater J.C., 1949, Phys.Rev., 76,1592.
 (225) Schrödinger E., 1926a, Ann,d.Physik., 79,489.
 (226) Schrödinger E., 1926b, Ann,d.Physik., 79,734.
 (227) Schrödinger E., 1926c, Ann,d.Phjysik., 80,437.
 (228) Schulz L.G., 1954, J.of Metals Tras. AIME, 1082.
 (229) Schwinger J., 1948, Phys.Rev., 74,1439.
 (230) Schwinger J., 1949a, Phys.Rev., 75,651.
 (231) Schwinger J., 1949b, Phys.Rev., 76,790.
 (232) Schwinger J., 1951a, Phys.Rev., 82,664.
 (233) Schwinger J., 1951b, Phys.Rev., 82,914.
 (234) Schwinger J., 1951c, Proc.N.A.S., 37,452.
 (235) Schwinger J., 1951d, Proc.N.A.S., 37,455.

- (236) Schwinger J., 1953a, Phys.Rev., 91,713.
 (237) Schwinger J., 1953b, Phys.Rev., 91,728.
 (238) Schwinger J., 1953c, Phys.Rev., 92,1283.
 (239) Schwinger J., 1954a, Phys.Rev., 93,615.
 (240) Schwinger J., 1954b, Phys.Rev., 94,1362.
 (241) Schwinger J., 1966, Physics Today 19,27.
 (241a) Swift, D.W., & Nixon, W.C. 1962, B.J.A.P., 13,288.
 (241b) Sugata, E., 1959, 電子顕微鏡, 2,24.
 (241c) Shinoda, G., Murata, K. and Shimizu, R., 1969, Quantitative Electron Probe Microanalysis (NBS Special Publication) p.155.
 (241d) Shimizu, R., et al., 1975, J.A.P., 46,1581.
 (241e) Stümpel J.W., Sanford P.W. and Goddard H.F., 1973, J. of phys. E, 6,397.
 (241f) Stair P.C., 1980, Rev.Sci.Instr., 51,132.
 (241g) Sievert R.M., 1936, Acta Radiol, 17,299.
- (242) Takagi S., 1962, Acta Cryst., 15,1311.
 (243) Takagi S., 1969, J.Phys.Soc.Japan, 26,1239.
 (244) Takagi S., 1975, International Summer School on X-Ray Dynamical Theory and Topography August 18-26.
 (245) Takagi S., 1962, Z.Naturforsch., 37a,460.
 (246) Taupin D., 1964, Bull.Soc.Franc.Miner.Crist., 86,469.
 (247) Taupin D., 1967, Acta Cryst., 23,25.
 (248) Tati T., and Tomonaga S., 1948, Prog.Theor.Phys., 3,391.
 (249) Tomonaga S., 1946, Prog.Theor.Phys., 1,27.
 (250) Tomonaga S., 1948, Phys.Rev. 74,224.
 (250a) Thomas L.H., 1927, Proc.Camb.Phil.Soc., 23,542.
 (250b) Thomson J.J., 1914, Phil.Mag., 27,757.
 (250c) 朝永振一郎, 福田信之, 福田博, 1955, 岩波講座物理学「場の量子力学」, 岩波書店, 東京.
- (251) Uragami T., 1969, J.Phys.Soc.Japan, 27,147.
 (252) Uragami T., 1970, J.Phys.Soc.Japan, 28,1508.
 (253) Uragami T., 1971, J.Phys.Soc.Japan, 31,1141.
 (253a) Umeno M., Kawabe H., and Shinoda G., 1966, Advances in X-ray Analysis, 9,
- (254) Wagenfeld H., 1968, Acta Cryst., A24,170.
 (255) Wagner H., 1956, Zeit.f.Physik., 146,126.
 (256) Wick G.C., 1950, Phys.Rev., 80,268.
 (257) Wilkens M., 1964a, Phys.Stat.Sol., 5,175.
 (258) Wilkens M., 1964b, Phys.Stat.Sol., 6,939.
 (259) Wilson A.J.C., 1980, Acta Cryst., A36,945.
 (260) Waller I, 1928, Zeit.f.Physik, 51,213.
 (261) Wentzel G., 1927, Zeit.f.Physik, 43,1.
 (262) Weiskop , 1939, Phys.Rev, 56,72.
 (263) Weisenberg K., 1924, Zeit.f.Physik, 23,229.
 (263a) Wannier G.H., 1937, Phys.Rev., 52,191.
- (263b) 山下勝治・南茂夫, 1972, 応用物理, 41,356.
 (263c) 吉田, 田中, 1926, Nature, 118,91.
 (263d) Yoda E., 1960, J. phys. Soc. Japan, 15 821.
 (264) Zachariassen W.H., 1945, Theory of X-Ray Diffraction in Crystals, John Wiley and Son Inc.

Publication list

T. Ohkawa, and H. Hashimoto:

"An X-Ray Diffraction Theory for Heavily Distorted Crystals"

I. On the Modified Monochromatic Spherical Waves

Physica Status Solidi to be published

T. Ohkawa, and H. Hashimoto:

"An X-Ray Diffraction Theory for Heavily Distorted Crystals"

I. On the Resonance Shift Function and the Dispersion
Relation in Distorted Crystals

Physica Status Solidi to be published

T. Ohkawa, and H. Hashimoto:

"On the Polarization-Mixing of X-Rays"

Quantum theory of interference of white x-rays

Physica Status Solidi, (a)84, no.2, (1984).

T. Ohkawa, H. Hashimoto, C. Kaito, and S. Urai:

"White and Black Strap Contrast Observed in the X-Ray Magnified
Laue Image of MnO_3 Crystals"

Japan J. Appl. Phys. 19, 2347 (1980).

H. Hashimoto, C. Kaito and T. Ohkawa:

"Study of the Structure of Helical Copper Whiskers by X-Ray
Diffraction Microscope"

Proceedings of 6-th inter.conf. on X-Ray Optics and Microanalysis
p659 (1972).

H.Hashimoto, S.Kozaki and T.Ohkawa:

"Selected Area Diffraction Pattern and Magnified Laue Diffraction Image of X-Ray Microscope"

Proceedings of 6-th inter.congres for Electron Microscopy, Kyoto p259 (1966).

H.Hashimoto, S.Kozaki and T.Ohkawa:

"Observation of Pendellosung Fringes and Images of Dislocations by X-Ray Shadow Micrographs of Si Crystals"

Appl.Phys.Lett. 6,1(1965).

S.Kozaki, T.Ohkawa, and H.Hashimoto:

"Selected Area Diffraction Patterns and Magnified Laue Diffraction Images by X-Ray Microscopy"

Appl.Phys. 39,3967(1968).

謝

辞

本研究は大阪大学工学部応用物理学教室教授 橋本初次郎博士の御指導の下で行われた。研究の全期間にわたり、橋本教授からいただいた激励と御助言に対し、心から感謝いたします。

また、橋本研究室助教授 志水隆一先生、助手上田一之先生、助手遠藤久満先生には実験上の便宜を享えていただき、かつ有益な御助言をいただきました。ここに深く感謝いたします。

京都工芸繊維大学の教授 塩尻詢先生には有意義な議論をしていただきました。又同大学 土籾内千尋博士には実験的・技術的な御協力をいただきました。厚く御礼申し上げます。そして大阪大学応用物理学教室と京都工芸繊維大学における橋本研究室の本研究に御協力下された方々に対し感謝いたします。

第六章に記したX線回折の古典理論の再構成について有益な御助言を下された東京理科大学教授 高木佐知夫先生、高エネルギー研究所教授 高良和武先生に深く感謝いたします。

研究論文仕上の過程で御支援いただきました職業訓練大学校・校長 浅枝敏夫博士に御礼申し上げます。又同大学校で本研究に協力下された数多くの同僚の方々及び畏友 小崎茂博士の御協力に感謝します。

最後に著者は故理学電機社長 志村義博博士に感謝いたします。氏の激励と経済的援助が本研究の土台となりました。又、氏のX線顕微鏡

に対する深い理解と情熱が、本研究を開始させた一つの嚆矢であった事を記録に
止めたいと思います。