

X線散乱による量子論の干渉効果の検証

菊池 徹

目次

1	経緯	1
2	実験の目的と概要	2
3	理論	2
3.1	回折の条件	2
3.2	X線の散乱強度の評価	4
4	実験	6
5	結果	6
6	考察	8
7	謝辞	8

1 経緯

そもそもの物理学的な動機から紆余曲折を経て今回の実験は行われたので、まずその経緯から述べる。

ことの始まりは R.Feynman の『Lectures on Physics』, Vol.3, § 3-3 における、結晶による中性子散乱実験の記述であった。そこでは、結晶を成す原子核がスピン $1/2$ を持つ場合、入射されてきた中性子と原子核との間でスピンの交換があれば非干渉性の散乱になり、スピンの交換がなければ干渉性の散乱になる、結果得られる角分布はこれら二つの角分布を単純に足したものになる、と書かれていた。スピンの交換がある場合は、反跳中性子が結晶中のどの原子核によって散乱されたのかを示す痕跡が残るため、散乱は干渉性になると言うのである。

この Feynman 自身による説明はだいぶ大雑把で不正確なところもあると思うが、とにかくこの実験は量子論においてどういったものが「原理的に見分けがつく」過程なのかという原理的な問題を中心テーマにしつつ、散乱、スピン、熱散逸、磁場、物質の構造、混合状態などといった興味深いテーマを学べるものであると感じられたので、実験として提案してみた。これが第一段階である。

第二段階は実験の目的にかなう物質や検出器の模索であった(実験の目的とは大まかに言えば、干渉性と非干渉性の散乱波の散乱角分布を様々な状況下でそれぞれ測定して、その実験値と理論値を比較することであ

る。)中性子線ビームを得ることは困難であるようなので、入射粒子として代わりに電子や分子を使えないか色々調べてみたが、どちらも透過率が低いので物質の表面という非常に厄介なものを相手にしなければならぬし、また相当の高真空をひかなければならぬことがわかったので、最終的には入射粒子を X 線にすることにした^{*1}。

第三段階は実験の目的にかなう X 線散乱実験の模索であった。X 線発生器と検出器は宇宙線研のご厚意により使わせていただけることになったが、この装置は X 線の回折スポットの大まかな位置を知るためのもので、現実には空気による X 線散乱などのバックグラウンドなどのため、散乱強度の定量的な測定には向いていないことが分かった。この頃はもう年の瀬で、これ以上計画段階で時間はかけられないと判断したので、未知のバックグラウンドについては仕方がないと諦めをつけ、その上で理論と実験が矛盾をきたしていないか調べる方向に実験の目的を修正した。

2 実験の目的と概要

3 理論

3.1 回折の条件

干渉性の散乱について考える。干渉性の散乱はある条件を満たしたとき回折現象を起こす。このセクションではその仕組みを調べる。図??のように、ある格子点(便宜上これを原点に取る)と、そこから R 離れたある格子点に波数ベクトル k を持った X 線が入射したとして、そこから波数 k' をもって散乱した X 線について考えると^{*2}、その位相差は $R \cdot (k - k')$ である。これより、 $R = n_i a_i$ と展開すると、全格子点からの振幅の和は

$$A_{k-k'} \sum_R e^{iR \cdot (k-k')} \left(= A_{k-k'} \sum_{n_1} e^{in_1 a_1 \cdot (k-k')} \sum_{n_2} e^{in_2 a_2 \cdot (k-k')} \sum_{n_3} e^{in_3 a_3 \cdot (k-k')} \right) \quad (1)$$

となる。ここで $A_{k-k'}$ は原点にある格子点(basis)からの散乱波の、 $k - k'$ 方向への振幅である。 $A_{k-k'}$ 以外の因子(これを $C_{k-k'}$ と呼ぼう)について考えると、それが 0 にならない必要十分条件は

$$\text{for all } i \quad \exists m_i \in \mathbf{Z} \quad a_i \cdot (k - k') = 2\pi m_i$$

である。これは $k - k'$ の a_i 成分が $2\pi m_i$ ということだから、 a_i と直交するベクトル b_i s.t. $a_i \cdot b_j = 2\pi \delta_{ij}$ を用いて $\exists m_i \in \mathbf{Z} \quad k - k' = m_i b_i$ となる。 b_i を具体的に書くと、

$$\begin{aligned} b_1 &= 2\pi \frac{a_2 \times a_3}{a_1 \cdot (a_2 \times a_3)} \\ b_2 &= 2\pi \frac{a_3 \times a_1}{a_1 \cdot (a_2 \times a_3)} \\ b_3 &= 2\pi \frac{a_1 \times a_2}{a_1 \cdot (a_2 \times a_3)} \end{aligned} \quad (2)$$

^{*1} しかし以下で見るように、この実験の目的にかなうほどの精度では、X 線散乱でも高真空をひかなければならぬことがあとで分かった

^{*2} 実際は、広がりを持った basis に、広がりを持った平面波としての X 線が押し寄せてくるのだが、その全ての効果を、線としての X 線を、点(格子点)としての basis に作用させることで表している。

となる。このような b_i を逆 (reciprocal) primitive vector、その任意の線形結合の総称を逆 (reciprocal) Bravais vector K 、それによって生成される格子を逆 (reciprocal) Bravais lattice と呼ぶことにすれば、結局

$$\begin{cases} \mathbf{k} - \mathbf{k}' = \mathbf{K} \text{ なる逆 Bravais vector } \mathbf{K} \text{ がある} \\ |\mathbf{k}| = |\mathbf{k}'| \end{cases} \quad (3)$$

なる k' でなければ回折は起こらないことになる。2 番目の条件は散乱が弾性散乱であることによる。

この条件 (3) を視覚的に理解するには Ewald 球が有用である。ある逆格子点を k の始点として、その端点を中心とした半径 $|k|$ の球が Ewald 球であるが、式 (3) を見れば、この Ewald 球面上にある逆格子点がちょうど先ほどの条件を満たす k' に対応していることが分かる。

ただ Ewald 球面上に逆格子点に乗ることは、入射 X 線に対して結晶が特別な (離散的な) 方向を向いているときにしか起こらないので、単純に結晶に X 線を当てても滅多に回折現象は起こらないことが分かる。そこで様々な方法が取られるが、今回の実験では結晶を適当な軸の周りに回転させながら X 線を照射する方法を取った。結晶を適当な軸の周りに回転させるということは、波数空間で見れば逆 Bravais lattice を回転させることになる。その回転の軌跡が Ewald 球面上に残す交点が回折のスポットを作ることになる。

条件 (3) が満たされないときは $C_{k-k'}$ が 0 になってしまうから、結晶からの散乱波は自分で自分自身を打ち消してしまう。この時入射エネルギーの結晶による減衰分は、結晶を成す原子の熱エネルギーに転化される。一方、非干渉性の散乱波の強度は各結晶原子からの散乱振幅の二乗和に比例するから消えてしまうことはない。つまり、たいいていの場合結晶からの散乱波として観測されるのは非干渉性の散乱である。

次に $A_{k-k'}$ の評価に移ろう。結晶が単一の元素からなるものとして、ひとつの basis が m 個の原子を持つとする。その原子の (例えば) 中心が位置 $d_1, d_2 \dots d_m$ にあるとき、式 (1) と同様にして $A_{k-k'}$ は

$$\begin{aligned} A_{k-k'} &= f_{k-k'} \cdot (\text{Thomson amplitude}) \cdot S_{k-k'} \\ S_{k-k'} &\equiv \sum_{i=1}^m e^{i d_i \cdot (k-k')} \end{aligned} \quad (4)$$

となる。 $f_{k-k'}$ は atomic scattering factor と呼ばれ、結晶を構成する元素 (を構成する電子たち) による散乱波の振幅の、単一の自由電子によるそれ (Thomson amplitude) に対する比を表す。したがって $f_{k-k'} \cdot (\text{Thomson amplitude})$ が元素ひとつによる散乱振幅を表す。また、 $S_{k-k'}$ を geometrical structure factor と呼び、これが 0 になるときは式 (3) が満たされていても回折は起こらない。式 (1) と式 (4) をまとめると、全体の散乱波は、一つの元素による散乱を、まず位相差を考慮しつつ basis 全体にわたって足し合わせ、さらに位相差を考慮しつつ lattice 全体にわたって足し合わせたものになる。

実際今回の実験で使用する Si 単結晶の geometrical structure factor について具体的に考えてみる。Si 単結晶はダイヤモンド型の結晶構造をしており、これは 2 つの面心立方格子 (fcc) が少しずれて構成されているとみなすことができる。この fcc の軸を x 軸、y 軸、z 軸として、その格子定数を a とすれば、そのずれは $(a/4)(\hat{x} + \hat{y} + \hat{z})$ となる。また、

$$\mathbf{a}_1 = \frac{a}{2}(\hat{y} + \hat{z}), \quad \mathbf{a}_2 = \frac{a}{2}(\hat{z} + \hat{x}), \quad \mathbf{a}_3 = \frac{a}{2}(\hat{x} + \hat{y})$$

ととれて、これより

$$\mathbf{b}_1 = \frac{2\pi}{a}(\hat{y} + \hat{z} - \hat{x}), \quad \mathbf{b}_2 = \frac{2\pi}{a}(\hat{z} + \hat{x} - \hat{y}), \quad \mathbf{b}_3 = \frac{2\pi}{a}(\hat{x} + \hat{y} - \hat{z})$$

となるから、 $\mathbf{K} = n_i \mathbf{b}_i$ とすれば

$$\begin{aligned}
 S_{\mathbf{K}} &= 1 + \exp\left[\frac{a}{4}i(\hat{x} + \hat{y} + \hat{z}) \cdot \mathbf{K}\right] \\
 &= 1 + \exp\left[\frac{1}{2}i\pi(n_1 + n_2 + n_3)\right] \\
 &= \begin{cases} 2 & n_1 + n_2 + n_3 \text{ が } 4 \text{ の倍数} \\ 1 \pm i & n_1 + n_2 + n_3 \text{ が奇数} \\ 0 & n_1 + n_2 + n_3 \text{ が } 4 \text{ の倍数でない偶数} \end{cases} \quad (5)
 \end{aligned}$$

を得る。よって、式 (3) が満たされていても、 $\mathbf{k} - \mathbf{k}'$ に対応する \mathbf{K} によっては回折が起こらないことになる。まとめると、Si 単結晶による回折の条件は式 (3) と式 (5) で表される。

3.2 X線の散乱強度の評価

まず、なぜ光子と結晶との相互作用から干渉性と非干渉性という性質の異なる波が出てくるかを考える。以下の二種類の量子過程が存在するのではないと思われる。第一種類目は



であり、これは干渉性散乱を引き起こす Rayleigh 散乱である。ただし、今回の実験で用いる X 線のエネルギーは 18keV と、電子の束縛エネルギーのオーダーである数 eV よりはるかに大きいので、実際の計算では Thomson 散乱として扱う。

第二種類目は



であり、これは非干渉性散乱を引き起こす”Compton”散乱である*3。束縛されていた電子は原子から跳び出すので、明らかにこの散乱は第一種類目の Rayleigh 散乱とは区別される。

Compton 散乱では X 線は Si 原子を”破壊”したという跡を残すことになる。先の Feynman lecture の例で言えば、第一種類目の Rayleigh 散乱がスピンの交換のない散乱で、第二種類目の Compton 散乱がスピンの交換のある散乱に対応する。

今回の実験では図 (??) のように平面型の検出器を置くことにより散乱 X 線の強度を測定した。このサブセクションでは結晶が一回転する間に、図 (??) のように (θ, ϕ) 方向の位置にある検出面の、単位面積あたり、

*3 ””をふったのは、厳密に言えば電子は束縛電子であり、自由電子との散乱につけられた名前である Compton 散乱という用語は使えないからである。ただし、上と同じ理由で実際諸量を計算する際には自由電子として扱う。

単位フラックスあたりで観測される photon の総数を表す式を求める。 $\phi = 0$ は図 (??) のように入射 X 線から見て水平方向右側を取った。平板型の結晶の回転軸は鉛直方向であり、その角速度は鉛直上から見て反時計回りに ω とする。

なお、結晶と検出器の距離を l 、結晶板の面積と厚み、原子数密度および (入射 X 線のエネルギーにおける) 減衰長をそれぞれ A, h, ρ, μ とし、Compton 散乱の微分断面積を $d\sigma_{\text{Com}}/d\Omega(\theta, \phi)$ 、Thomson 散乱の微分断面積を $d\sigma_{\text{Th}}/d\Omega(\theta, \phi)$ とする。

まず非干渉性の散乱波が検出器面に残す単位面積あたりの photon の数 $N_{\text{inco}}(\theta, \phi)$ を考える。各結晶原子からの散乱波の位相差は結晶が回転することによって時間変化するが、非干渉性の散乱の場合はこの位相差はまったく観測に影響しない。

時刻 t において、入射 X 線から見える結晶板の面積が $A |\cos \omega t|$ 、厚みが $h / |\cos \omega t|$ であることに注意すれば^{*4}、

$$\begin{aligned} N_{\text{inco}}(\theta, \phi) &= \cos \theta \frac{1}{4\pi(l/\cos \theta)^2} \int_0^{2\pi/\omega} dt \rho A |\cos \omega t| \int_0^{h/|\cos \omega t|} dx e^{-\frac{x}{\mu}} \frac{d\sigma_{\text{Com}}}{d\Omega}(\theta, \phi) \\ &\approx \cos^3 \theta \frac{1}{4\pi l^2} \frac{2\pi}{\omega} \rho A h \frac{d\sigma_{\text{Com}}}{d\Omega}(\theta, \phi) \end{aligned} \quad (6)$$

となる。一番最初の $\cos \theta$ の因子は散乱 X 線と検出器面のなす角が θ であることによる。ここで実験に使われる 18keV の X 線において Si の非干渉性散乱の減衰長 μ が約 3.16cm であるのに対して、結晶板の厚み h が $\sim 0.1\text{cm}$ であることから減衰に関して第 0 近似を用いた。

次に干渉性の散乱が検出器面に残す単位面積あたり、単位フラックスあたりの photon の数 $N_{\text{co}}(\theta, \phi)$ を考える。波は結晶が一回転するうちのある瞬間のある方向にだけ強い強度を持つので、その強度は時間と角度の積分に関してデルタ関数的に振舞うとしてよい。 i を回折スポットに対する通し番号とすると、

$$\begin{aligned} N_{\text{co}}(\theta, \phi) &= \int_0^{2\pi/\omega} dt I(\theta, \phi) \sum_i \frac{1}{\cos \theta_i} \delta(t - t_i) \delta(\theta - \theta_i) \delta(\phi - \phi_i) \\ &= \sum_i \frac{1}{\cos \theta_i} I(\theta_i, \phi_i) \delta(\theta - \theta_i) \delta(\phi - \phi_i) \end{aligned} \quad (7)$$

という表式になる。ここで $\frac{1}{\cos \theta_i}$ は、回転する結晶が、 i 番目の回折を起こすような配位を通過する時間である。また、 $I(\theta_i, \phi_i)$ は

$$I(\theta_i, \phi_i) = \cos \theta \frac{1}{4\pi(l/\cos \theta)^2} |f(\theta_i)S(\theta_i, \phi_i)|^2 \frac{d\sigma_{\text{Th}}}{d\Omega}(\theta_i, \phi_i) \left(\frac{\rho A h}{8}\right)^2 \quad (8)$$

ここで f は atomic scattering factor、 S は geometrical structure factor である。 $\rho A h/8$ は結晶試料内の basis の数であり、8 は一つの basis 内に Si 原子が 8 個あることからくる。 $|S|^2$ は式 (5) に従って 4 もしくは 2 の値をとる。 f を直接計算することは難しいので、数表を利用する。

実際の実験では空気による散乱などにより、角分布は均されてしまう。干渉性の散乱の方が非干渉性の方より角分布の凹凸が激しいことを考慮すれば、以上より、検出器の位置 (θ_i, ϕ_i) における反跳光子の計数率の比

^{*4} $A |\cos \omega t|$ にはゼロ以上の下限が、 $h / |\cos \omega t|$ には結晶板の幅程度の上限があるが、これらを気にしなくてはならない状況は結晶が一回転する間の一瞬の間だけなので、以下ではこれを考えていない。

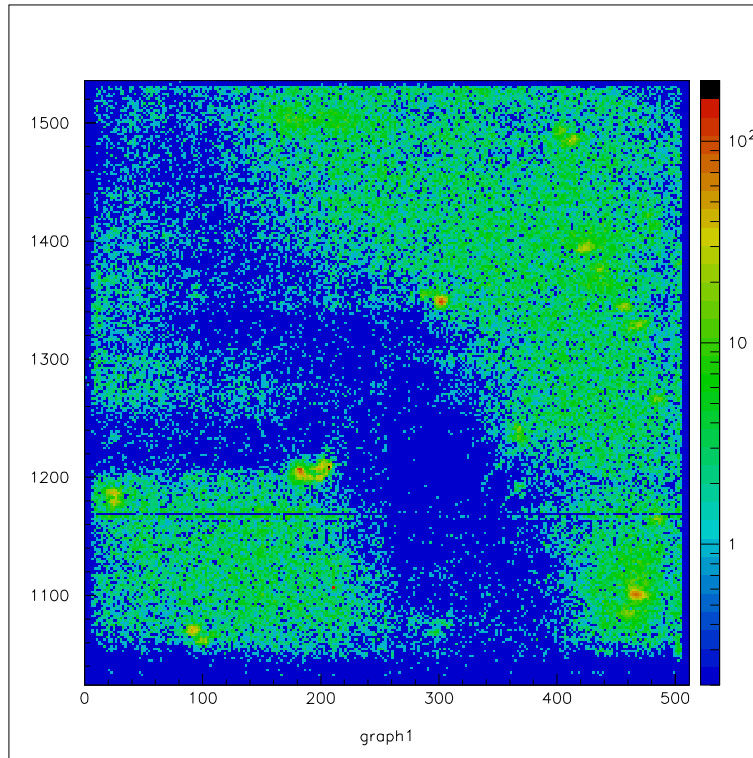


図 1 実験結果

は以下のように抑えられる (デルタ関数には関しては積分をとる)。

$$\frac{\text{非干渉性}}{\text{干渉性}} > \frac{2\pi \frac{d\sigma_{\text{com}}}{d\Omega}(\theta_i, \phi_i)}{\cos \theta_i |f(\theta_i) S(\theta_i, \phi_i)|^2 \frac{d\sigma_{\text{Th}}}{d\Omega}(\theta_i, \phi_i) \frac{\rho A h}{64}} \quad (9)$$

ただし、干渉性の散乱に関しては、異なる Bravais vector が同じ (θ_i, ϕ_i) を与える場合には、それらについて足し合わせなければならない。

4 実験

5 結果

μ PIC の検出面に入射した光子を図 1 に示す。特に、5 つ以上の光子が来たチャンネルだけを表示したものが図 2 である。併せて数値計算による結果を図 3 に示した。

数値計算に関して一言：今回、結晶のセッティングに関しては、 $0.8\text{mm} \times 0.8\text{mm}$ の面が $(1,0,0)$ 面であるとの情報しかなかったので、角度一つ分だけ結晶がどの方向を向いているのかわからない。そこで、数値計算ではその一つ分の角度について数十個異なるパラメータを代入して、最も実験結果にあったものを採用した。

さて、では今回の実験の主たる目的である式 (9) の検証に移ろう。

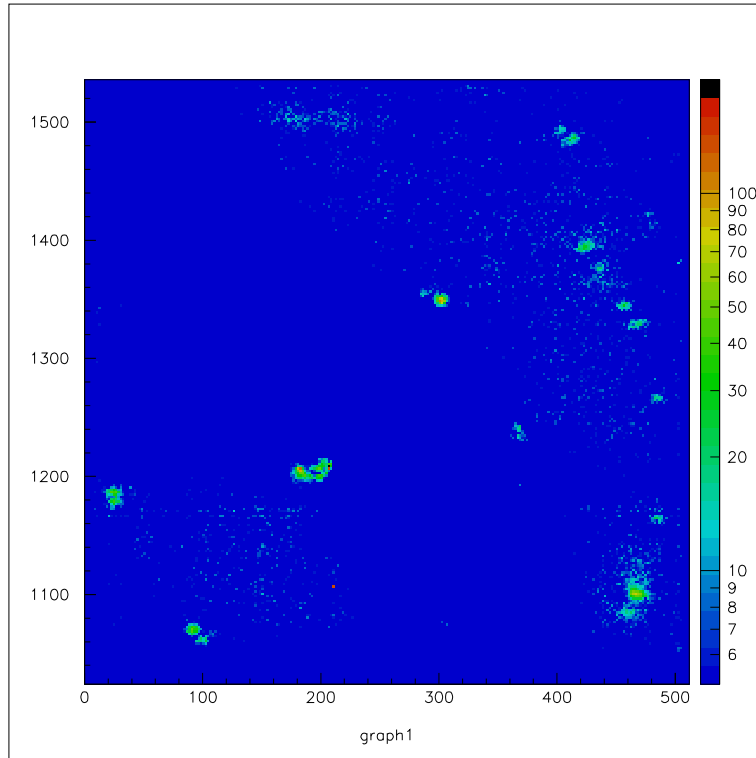


図2 実験結果2：光子が5個以上きたチャンネルのみ

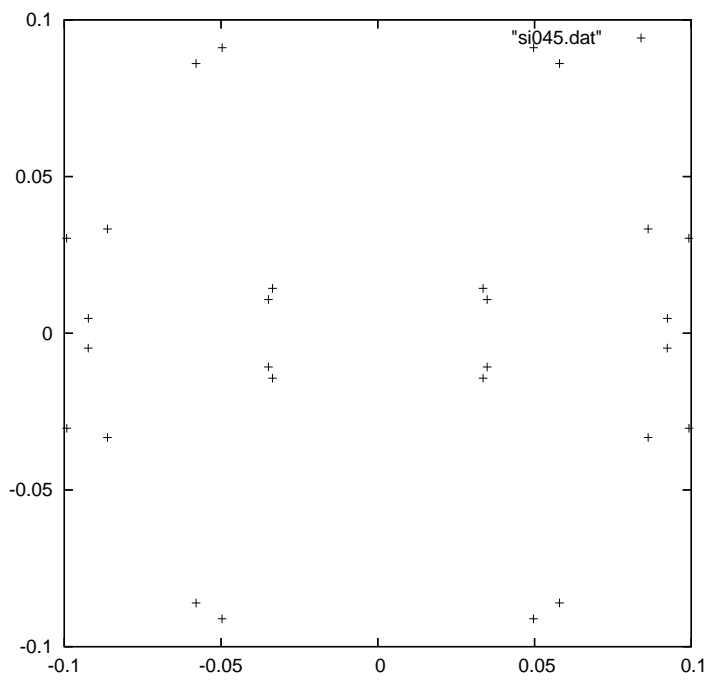


図3 数値計算による回折スポットの分布

6 考察

7 謝辞

今回の実験では多くの方々に助けていただいた。

京都大学工学研究科の田村 剛三郎教授と松原 英一郎教授、理学研究科の馬場 正昭准教授には X 線の散乱実験について相談に乗っていただいた。特に松原教授は突然押しかけてきた私に Si 試料をくださった。

京都大学理学研究科の宇宙線研究室には X 線の回折装置から検出器まで貸していただいた。特に土屋兼一氏には実際の実験を手伝っていただいたり、データの提供、検出器の説明や解析方法まで教えていただき、頭が上がらない。

高エネルギー研究室の方々には諸般に渡ってお世話になった。横山さんや中家先生には実験の立案から実行、解析全てにわたってご教授いただいた。研究室のメンバーではないが西村さんにはコンピュータやプログラミングについて手伝っていただいた。同じ P1 のメンバーには色々な面で支えてもらった。

非常識なまでにレポートの提出が遅れてしまい、中家先生をはじめレポートの完成を待っていただいた方々にはとても申し訳ないことをしてしまった。合わす顔もないが、この未完成なレポートを提出させていただきたい。