

3 非共鳴 X 線磁気散乱

非共鳴 X 線磁気散乱では、全体の散乱振幅がスピン磁気モーメントによる散乱振幅と軌道磁気モーメントによる散乱振幅とを足し合わせた形で表されるため、散乱の幾何学的条件を工夫することで両者を分離した測定が可能になる。従って、スピン磁気モーメントの形状因子と軌道磁気モーメントの形状因子とを区別して測定することができ、中性子回折による磁気形状因子測定では得ることの出来ない貴重な情報を得ることが可能となる [3]。

また、共鳴 X 線回折が本来の目的の実験で、非共鳴 X 線磁気回折に特別の目的がある実験でなくても、多くの場合、共鳴 X 線の信号と同時に非共鳴 X 線磁気回折の信号も重なってみられる。データを正しく解釈し、多くの情報を読み取る意味でも、非共鳴 X 線磁気散乱の機構について知っておくのは有用である。

3.1 スピン磁気形状因子と軌道磁気形状因子

式 (1.31) にその面影が見られるが、

$$Q(\boldsymbol{\kappa}) = \sum_j e^{-i\boldsymbol{\kappa}\cdot\mathbf{r}_j} \left\{ \frac{i}{\hbar\kappa^2} (\boldsymbol{\kappa} \times \mathbf{p}_j) + \mathbf{s}_j \right\} \quad (3.1)$$

という物理量は、実空間での磁気モーメント密度のフーリエ変換、すなわち磁気形状因子に関する物理量である。これは中性子磁気散乱の理論でも出てくる [4]。このうち第 1 項が軌道部分、第 2 項がスピン部分である。スピン部分は、実空間におけるスピン磁気モーメント密度 $\mathbf{m}_S(\mathbf{r})$ と、フーリエ変換の関係

$$Q_S(\boldsymbol{\kappa}) = \sum_j e^{-i\boldsymbol{\kappa}\cdot\mathbf{r}_j} \mathbf{s}_j \quad (3.2)$$

$$= -\frac{1}{2\mu_B} \int \mathbf{m}_S(\mathbf{r}) e^{-i\boldsymbol{\kappa}\cdot\mathbf{r}} d\mathbf{r} \quad (3.3)$$

で結びつけられており、まさにスピン磁気モーメントの形状因子と呼ぶことが出来る。第 1 項の軌道部分も同様であり、実空間における軌道磁気モーメント密度 $\mathbf{m}_L(\mathbf{r})$ のフーリエ変換の形になっている。ただし、既にこの項は散乱ベクトル $\boldsymbol{\kappa}$ に垂直な成分になっていることに注意しなければならないつまり、軌道磁気モーメントの形状因子を $Q_L(\boldsymbol{\kappa})$ とすると、

$$Q_{\perp L}(\boldsymbol{\kappa}) = \frac{i}{\hbar\kappa^2} \sum_j e^{-i\boldsymbol{\kappa}\cdot\mathbf{r}_j} (\boldsymbol{\kappa} \times \mathbf{p}_j) \quad (3.4)$$

$$= \hat{\boldsymbol{\kappa}} \times (Q_L \times \hat{\boldsymbol{\kappa}}) = Q_L - (Q_L \cdot \hat{\boldsymbol{\kappa}}) \hat{\boldsymbol{\kappa}} \quad (3.5)$$

$$Q_L(\boldsymbol{\kappa}) = -\frac{1}{2\mu_B} \int \mathbf{m}_L(\mathbf{r}) e^{-i\boldsymbol{\kappa}\cdot\mathbf{r}} d\mathbf{r} \quad (3.6)$$

という関係になっている [4]。このとき、 $-2\mu_B(Q_L + Q_S)$ が磁気形状因子 (magnetic form factor) であり、これの $\boldsymbol{\kappa} = 0$ での値がイオンの全磁気モーメントとなる^{*31)}。

式 (1.31) では $Q_{\perp L} \cdot \mathcal{A}$ という形が出てくるが、 $Q_{\perp L}$ ではなく Q_L を使って F_{mag} を書き下すため、次のような変形を行っておく。

$$\begin{aligned} Q_{\perp L} \cdot \mathcal{A} &= \{\hat{\boldsymbol{\kappa}} \times (Q_L \times \hat{\boldsymbol{\kappa}})\} \cdot \mathcal{A} \\ &= \{Q_L - (Q_L \cdot \hat{\boldsymbol{\kappa}}) \hat{\boldsymbol{\kappa}}\} \cdot \mathcal{A} \\ &= Q_L \cdot \{\mathcal{A} - (\mathcal{A} \cdot \hat{\boldsymbol{\kappa}}) \hat{\boldsymbol{\kappa}}\} = Q_L \cdot \mathcal{A}_{\perp} \end{aligned} \quad (3.7)$$

ここで \mathcal{A}_{\perp} は、 \mathcal{A} の散乱ベクトル $\boldsymbol{\kappa}$ に垂直な成分であり、次のように表される。

$$\begin{aligned} \mathcal{A}_{\perp} &= \mathcal{A} - (\mathcal{A} \cdot \hat{\boldsymbol{\kappa}}) \hat{\boldsymbol{\kappa}} = \hat{\boldsymbol{\kappa}} \times (\mathcal{A} \times \hat{\boldsymbol{\kappa}}) \\ &= -2(1 - \hat{\boldsymbol{k}} \cdot \hat{\boldsymbol{k}}') [\hat{\boldsymbol{\kappa}} \times \{(\boldsymbol{\varepsilon}^{*'} \times \boldsymbol{\varepsilon}) \times \hat{\boldsymbol{\kappa}}\}] = -4 \sin^2 \theta [\hat{\boldsymbol{\kappa}} \times \{(\boldsymbol{\varepsilon}^{*'} \times \boldsymbol{\varepsilon}) \times \hat{\boldsymbol{\kappa}}\}] \end{aligned} \quad (3.8)$$

^{*31)} 磁気形状因子も、Thomson 散乱の原子散乱因子 (図 1.2) と同様、 κ が大きくなるにつれて小さくなる。

また, \mathbf{B} を (1.34) からそのまま書き写しておく.

$$\mathbf{B} = \{(\boldsymbol{\varepsilon}'^* \times \boldsymbol{\varepsilon}) - (\boldsymbol{\varepsilon} \cdot \hat{\mathbf{k}}')(\boldsymbol{\varepsilon}'^* \times \hat{\mathbf{k}}') + (\boldsymbol{\varepsilon}'^* \cdot \hat{\mathbf{k}})(\boldsymbol{\varepsilon} \times \hat{\mathbf{k}}) - (\hat{\mathbf{k}}' \times \boldsymbol{\varepsilon}'^*) \times (\hat{\mathbf{k}} \times \boldsymbol{\varepsilon})\} \quad (3.9)$$

である^{*32)}.

以上より, F_{mag} は,

$$\begin{aligned} F_{\text{mag}} &= -\frac{e^2}{mc^2}(-i\frac{\hbar\omega}{mc^2})\langle a | (\mathbf{Q}_{\perp L} \cdot \mathbf{A} + \mathbf{Q}_S \cdot \mathbf{B}) | a \rangle \\ &= -\frac{e^2}{mc^2}(-i\frac{\hbar\omega}{mc^2})\langle \langle \mathbf{Q}_L \rangle \cdot \mathbf{A}_{\perp} + \langle \mathbf{Q}_S \rangle \cdot \mathbf{B} \rangle \end{aligned} \quad (3.10)$$

となる. ここで, $\langle \mathbf{Q}_S \rangle$ と $\langle \mathbf{Q}_L \rangle$ は, それぞれ, 磁気形状因子のスピンおよび軌道部分の期待値である.

3.2 偏光依存性の簡単な解釈

図 4.3 に示すような実験の配置で, 直線偏光の X 線の散乱過程を考える. 実験室系の XYZ 軸について, X 線の波数ベクトルと偏光ベクトルは次のように表される^{*33)}.

$$\begin{aligned} \mathbf{k} &= k(0, \cos \theta, -\sin \theta), & \mathbf{k}' &= k(0, \cos \theta, \sin \theta), \\ \boldsymbol{\varepsilon}_{\sigma} &= (1, 0, 0), & \boldsymbol{\varepsilon}'_{\sigma} &= (1, 0, 0), \\ \boldsymbol{\varepsilon}_{\pi} &= (0, -\sin \theta, -\cos \theta), & \boldsymbol{\varepsilon}'_{\pi} &= (0, \sin \theta, -\cos \theta). \end{aligned} \quad (3.11)$$

これらを (3.8) と (3.9) に代入することで, 具体的に F_{mag} を計算してみよう. 図 4.3 において, 実験室系の XYZ 座標軸について, $\langle \mathbf{Q}_S \rangle$ と $\langle \mathbf{Q}_L \rangle$ がそれぞれ

$$\langle \mathbf{Q}_S \rangle = (Q_{SX}, Q_{SY}, Q_{SZ}) \quad (3.12)$$

$$\langle \mathbf{Q}_L \rangle = (Q_{LX}, Q_{LY}, Q_{LZ}) \quad (3.13)$$

のような成分を持っているとき, $\sigma\sigma'$, $\sigma\pi'$, $\pi\sigma'$, $\pi\pi'$ の各散乱過程に対する散乱振幅を 2×2 の行列で表すと, 次のようになる.

$$F_{\text{mag}} = -\frac{e^2}{mc^2}(-i\frac{\hbar\omega}{mc^2}) \begin{pmatrix} G_{\sigma\sigma'} & G_{\sigma\pi'} \\ G_{\pi\sigma'} & G_{\pi\pi'} \end{pmatrix} \quad (3.14)$$

ここで,

$$\begin{aligned} G_{\sigma\sigma'} &= Q_{SX} \sin 2\theta \\ G_{\sigma\pi'} &= 2 \sin^2 \theta \{ (2Q_{LY} + Q_{SY}) \cos \theta - Q_{SZ} \sin \theta \} \\ G_{\pi\sigma'} &= -2 \sin^2 \theta \{ (2Q_{LY} + Q_{SY}) \cos \theta + Q_{SZ} \sin \theta \} \\ G_{\pi\pi'} &= (4Q_{LX} \sin^2 \theta + Q_{SX}) \sin 2\theta \end{aligned} \quad (3.15)$$

である. これらの式から, 磁気モーメントの向きや, スピン磁気モーメントと軌道磁気モーメントの成分について, 様々なことが読み取れる.

- $\sigma\sigma'$ では, スピン磁気モーメントのみの X 軸成分 (散乱面と垂直な成分) が観測される. また, その散乱振幅は散乱角 2θ が 90° に近づくにつれて大きくなる.
- $\pi\pi'$ では, 磁気モーメントの X 軸成分 (散乱面と垂直な成分) が観測され, 散乱振幅が散乱角 2θ が 90° に近づくにつれて大きくなる^{*34)}. また, スピン磁気モーメントと軌道磁気モーメントの両方の寄与が混じっており, この式だけを使った分離は単純ではない.
- $\sigma\pi'$ や $\pi\sigma'$ では磁気モーメントの YZ 面成分 (散乱面内成分) が観測される. スピン磁気モーメントと軌道磁気モーメントの両方の寄与が混じっており, この式を使っでの分離は単純ではない.

^{*32)} $\hat{\mathbf{k}}$ のように hat が付いているベクトルは, そのベクトル方向の単位ベクトルを表す.

^{*33)} 偏光ベクトルの向きの定義に注意する. 円偏光まで含めて統一的に扱うためには, $\boldsymbol{\varepsilon}_{\sigma} \times \boldsymbol{\varepsilon}_{\pi} = \hat{\mathbf{k}}$ になるようにしておくのがよい.

^{*34)} この点は電荷による Thomson 散乱とは大きく異なる. Thomson 散乱では, $\pi\pi'$ の散乱振幅に $\cos 2\theta$ の因子が付き, $2\theta = 90^\circ$ ではゼロになる.

座標系について $\langle Q_S \rangle$ や $\langle Q_L \rangle$ は、結晶の xyz 軸に対して定義するのがふつうである。結晶の xyz 軸が実験室系の XYZ 軸と一致している場合は式 (3.15) がそのまま使えるが、そうでない場合は波数ベクトルや偏光ベクトルを回転させて変換し、結晶の xyz 軸について定義し直さなければならない。

3.3 行列を用いた表記

Thomson 散乱の散乱振幅にでてくる $\epsilon'^* \cdot \epsilon$ は、 σ - σ' 散乱過程については $\epsilon'_\sigma \cdot \epsilon_\sigma = 1$ 、 π - π' 散乱過程については、 $\epsilon'_\pi \cdot \epsilon_\pi = \hat{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{k}}' = \cos 2\theta$ であり、それ以外は $\epsilon'_\pi \cdot \epsilon_\sigma = \epsilon'_\sigma \cdot \epsilon_\pi = 0$ である。このことを次のような 2×2 の行列で表すことにする^{*35)}。

$$\epsilon'^* \cdot \epsilon = \begin{array}{c} \sigma \quad \pi \\ \sigma' \left(\begin{array}{cc} \epsilon'_\sigma \cdot \epsilon_\sigma & \epsilon'_\sigma \cdot \epsilon_\pi \\ \epsilon'_\pi \cdot \epsilon_\sigma & \epsilon'_\pi \cdot \epsilon_\pi \end{array} \right) = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \hat{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{k}}' \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \cos 2\theta \end{pmatrix} \end{array} \quad (3.16)$$

同様に、磁気散乱振幅の \mathcal{A} にでてくる $\epsilon'^* \times \epsilon$ については、

$$\epsilon'^* \times \epsilon = \begin{array}{c} \sigma \quad \pi \\ \sigma' \left(\begin{array}{cc} \epsilon'_\sigma \times \epsilon_\sigma & \epsilon'_\sigma \times \epsilon_\pi \\ \epsilon'_\pi \times \epsilon_\sigma & \epsilon'_\pi \times \epsilon_\pi \end{array} \right) = \begin{pmatrix} 0 & \hat{\mathbf{k}} \\ -\hat{\mathbf{k}}' & -(\hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}') \end{pmatrix} \end{array} \quad (3.17)$$

なので、 \mathcal{A} は、

$$\mathcal{A} = \begin{pmatrix} 0 & -2\hat{\mathbf{k}}(1 - \cos 2\theta) \\ 2\hat{\mathbf{k}}'(1 - \cos 2\theta) & 2(\hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}')(1 - \cos 2\theta) \end{pmatrix} \quad (3.18)$$

と表される。 \mathcal{A}_\perp は、

$$\mathcal{A}_\perp = \begin{pmatrix} 0 & -(\hat{\mathbf{k}} + \hat{\mathbf{k}}')(1 - \cos 2\theta) \\ (\hat{\mathbf{k}} + \hat{\mathbf{k}}')(1 - \cos 2\theta) & 2(\hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}')(1 - \cos 2\theta) \end{pmatrix} \quad (3.19)$$

であり、 \mathcal{B} は、

$$\mathcal{B} = \begin{pmatrix} \hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}' & -\hat{\mathbf{k}}'(1 - \cos 2\theta) \\ \hat{\mathbf{k}}(1 - \cos 2\theta) & \hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}' \end{pmatrix} \quad (3.20)$$

と表される。

3.4 散乱振幅演算子

散乱振幅演算子 \hat{G} を次のように定義する^{*36)}。

$$\begin{aligned} \hat{G} &= \{(\epsilon' \cdot \epsilon)F_c - i\tau(\langle Q_L \rangle \cdot \mathcal{A}_\perp + \langle Q_S \rangle \cdot \mathcal{B})\} \\ &\equiv \hat{I}\beta + \boldsymbol{\alpha} \cdot \boldsymbol{\sigma} \end{aligned} \quad (3.21)$$

ここで、 $\tau = \hbar\omega/mc^2$ は X 線のエネルギー $\hbar\omega$ と電子静止質量 $mc^2 = 511 \text{ keV}$ との比、 $\boldsymbol{\sigma}$ は Pauli 行列

$$\sigma_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_y = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (3.22)$$

^{*35)} 偏光ベクトルや波数ベクトルは結晶軸 xyz に対して定義されるものであり、結晶の配置によって変わる。しかし、 $\hat{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{k}}' = \cos 2\theta$ は常に成り立つ。 xyz 軸と XYZ 軸とが一致していなくても、式 (3.16)~(3.20) は一般的に成り立つ。

^{*36)} 散乱振幅演算子を使った計算方法については、§5 「Stokes パラメータを使った散乱振幅の表現」を参照。

である。 \hat{I} は単位行列で、 $\alpha = (\alpha_x, \alpha_y, \alpha_z)$ と β がこれらの係数になっている。具体的に \hat{G} の行列要素を計算すると、

$$\begin{aligned} G_{\sigma\sigma'} &= F_c - i\tau \langle \mathbf{Q}_S \rangle \cdot (\hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}') = \beta + \alpha_z \\ G_{\sigma\pi'} &= -i\tau(1 - \cos 2\theta) \{ \langle \mathbf{Q}_S \rangle \cdot \hat{\mathbf{k}} + \langle \mathbf{Q}_L \rangle \cdot (\hat{\mathbf{k}} + \hat{\mathbf{k}}') \} = \alpha_x + i\alpha_y \\ G_{\pi\sigma'} &= i\tau(1 - \cos 2\theta) \{ \langle \mathbf{Q}_S \rangle \cdot \hat{\mathbf{k}}' + \langle \mathbf{Q}_L \rangle \cdot (\hat{\mathbf{k}} + \hat{\mathbf{k}}') \} = \alpha_x - i\alpha_y \\ G_{\pi\pi'} &= F_c \cos 2\theta - i\tau \{ \langle \mathbf{Q}_S \rangle + 2(1 - \cos 2\theta) \langle \mathbf{Q}_L \rangle \} \cdot (\hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}') = \beta - \alpha_z \end{aligned} \quad (3.23)$$

であるから、これらを解くことにより、

$$\begin{aligned} \alpha_x &= -\frac{i\tau}{2}(1 - \cos 2\theta)(\hat{\mathbf{k}} - \hat{\mathbf{k}}') \cdot \langle \mathbf{Q}_S \rangle \\ \alpha_y &= -\frac{\tau}{2}(1 - \cos 2\theta)(\hat{\mathbf{k}} + \hat{\mathbf{k}}') \cdot (\langle \mathbf{Q}_S \rangle + 2\langle \mathbf{Q}_L \rangle) \\ \alpha_z &= \frac{1}{2}(1 - \cos 2\theta) \{ F_c + 2i\tau(\hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}') \cdot \langle \mathbf{Q}_L \rangle \} \\ \beta &= \frac{1}{2}(1 + \cos 2\theta)F_c - i\tau(\hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}') \cdot \{ \langle \mathbf{Q}_S \rangle + (1 - \cos 2\theta)\langle \mathbf{Q}_L \rangle \} \end{aligned} \quad (3.24)$$

となる。

3.5 Thomson 散乱と磁気散乱の干渉

今考えている (3.21) には、電荷による Thomson 散乱と、磁気モーメントによる磁気散乱とが含まれている。散乱振幅演算子 \hat{G} が決まれば、入射 X 線の変更状態を表す Stokes パラメータ (P_1, P_2, P_3) を指定することで散乱断面積が計算できる^{*37)}。(5.31) より、

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right) = \beta^\dagger \beta + \alpha^\dagger \cdot \alpha + \beta^\dagger (\mathbf{P} \cdot \alpha) + (\mathbf{P} \cdot \alpha^\dagger) \beta + i\mathbf{P} \cdot (\alpha^\dagger \times \alpha). \quad (3.25)$$

これに (3.24) を代入して、具体的な表式を求めてみる。 τ について 0 次と 1 次の項を次に記す。

$$\begin{aligned} \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right) &= \left\{ 1 - \frac{1}{2}(1 - P_3) \sin^2 2\theta \right\} |F_c|^2 \\ &+ \frac{\tau}{2} \left[(\hat{\mathbf{k}} - \hat{\mathbf{k}}') \cdot \{ P_1 \sin^2 2\theta \operatorname{Im}[F_c^* \langle \mathbf{Q}_S \rangle] + P_2 (1 - \cos 2\theta)^2 \operatorname{Re}[F_c^* \langle \mathbf{Q}_S \rangle] \} \right. \\ &\quad - (\hat{\mathbf{k}} + \hat{\mathbf{k}}') \cdot \{ P_1 (1 - \cos 2\theta)^2 \operatorname{Im}[F_c^* (\langle \mathbf{Q}_S \rangle + 2\langle \mathbf{Q}_L \rangle)] + P_2 \sin^2 2\theta \operatorname{Re}[F_c^* (\langle \mathbf{Q}_S \rangle + 2\langle \mathbf{Q}_L \rangle)] \} \\ &\quad + 2(\hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}') \cdot \{ 2 \cos 2\theta (1 - \cos 2\theta) (1 - P_3) \operatorname{Im}[F_c^* \langle \mathbf{Q}_L \rangle] \\ &\quad \left. + \{ (1 + P_3) + (1 - P_3) \cos 2\theta \} \operatorname{Im}[F_c^* \langle \mathbf{Q}_S \rangle] \} \right]. \end{aligned} \quad (3.26)$$

τ について 0 次の項 電荷による Thomson 散乱だけの散乱強度を表す。完全な σ 偏光のとき、 $P_3 = 1$ であるから、散乱断面積は $|F_c|^2$ となる。逆に完全な π 偏光のとき、 $P_3 = -1$ であるから、散乱断面積は $|F_c|^2 \cos^2 2\theta$ となり、 $2\theta = 90^\circ$ のとき散乱強度はゼロになる。

^{*37)} 散乱振幅演算子 \hat{G} と Stokes パラメータ (P_1, P_2, P_3) を使った表記法は、§5 「Stokes パラメータを使った散乱振幅の表現」を参照。要点だけ記せば次のとおり。入射 X 線の偏光状態を表す密度行列演算子

$$\hat{\mu} = \frac{1}{2}(\hat{I} + \mathbf{P} \cdot \hat{\sigma})$$

を使うことで、散乱断面積が

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right) = \operatorname{Tr} \{ \hat{\mu} \hat{G}^\dagger \hat{G} \}$$

と表される。単位行列 \hat{I} とパウリ行列 $\hat{\sigma}$ を使って、

$$\hat{G} = \beta \hat{I} + \alpha \cdot \hat{\sigma}$$

と表し、この α, β を使って $\operatorname{Tr} \{ \hat{\mu} \hat{G}^\dagger \hat{G} \}$ を計算すると、(3.25) が得られる。

τ について 1 次の項 Thomson 散乱と磁気散乱の干渉項である。強磁性体のように、結晶構造因子と磁気構造因子の両方が同じ波数ベクトルにおいて存在しているとき、この干渉項が現れる。これは τ^2 の項に比べると、Thomson 散乱との強度比がずっと大きいので、これを利用して磁気散乱を検出できる可能性は十分にある。式を見ればわかるように、 $\langle Q_S \rangle$ を含む項と $\langle Q_L \rangle$ を含む項との足し合わせになっており、入射 X 線の偏光や外部磁場による磁化の方向など、回折条件を変えて測定することで $\langle Q_S \rangle$ と $\langle Q_L \rangle$ を分離することが出来るのが特徴である。

τ について 2 次の項 ここでは複雑になるので示さなかったが、これは純粋な磁気散乱の項である。 τ^2 がかかってくるので、磁気散乱の強度は電荷による散乱強度と比べて極端に小さくなる。例えば 10 keV ($\lambda = 1.2398 \text{ \AA}$) の X 線では $\tau = 0.01956$ なので、 $\tau^2 = 0.00038$ である。さらに悪いことには、電荷による散乱ではイオン内のすべての電子 (数十個) が散乱に関わるのに対し、磁気散乱では磁性を担う殻内の不対電子しか散乱に寄与しない。それでも反強磁性秩序のように、超格子反射あるいは結晶構造因子がゼロとなる禁制反射の位置に磁気散乱の Bragg 点が現れるのであれば、この小さな磁気散乱をバックグラウンドの上に観測することは可能である。しかし強磁性体では、結晶と同じ周期性で磁気モーメントが配列するため、結晶格子の Bragg 点と同じ位置で磁気散乱が起きる。このように小さな強度が巨大な Thomson 散乱と重なっている場合、よほど Thomson 散乱が弱くない限り、磁気散乱項の検出はほぼ不可能である^{*38)}。

3.6 ほとんど直線偏光した楕円偏光ビームの利用 — 強磁性体での磁気散乱の観測 —

式 (3.26) を極めて巧妙に応用する例として、ほとんど直線偏光した楕円偏光ビームを使った、強磁性体における磁気散乱の観測、および、スピン・軌道磁気形状因子の分離測定について紹介する^{*39)}。上流に移相子を設置して $\chi = -45^\circ$ に固定し、 θ を回して移相量 δ を変化させると、 P_3 と P_2 が混じり合い、 $P_1 = 0$ であるような偏光ビームを作ることができる。これを利用するとしよう^{*40)}。

3.6.1 散乱面内に磁場をかけるときの Flipping Ratio

式 (3.26) で $P_1 = 0$ とすると、

$$\begin{aligned} \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right) = & \left\{ 1 - \frac{1}{2}(1 - P_3) \sin^2 2\theta \right\} |F_c|^2 \\ & + \frac{\tau}{2} P_2 (1 - \cos 2\theta) \left[(\hat{k} - \hat{k}') \cdot \left\{ (1 - \cos 2\theta) \text{Re}[F_c^* \langle Q_S \rangle] \right\} \right. \\ & \quad \left. - (\hat{k} + \hat{k}') \cdot \left\{ (1 + \cos 2\theta) \text{Re}[F_c^* (\langle Q_S \rangle + 2\langle Q_L \rangle)] \right\} \right] \\ & + \tau \left[(\hat{k} \times \hat{k}') \cdot \left\{ 2 \cos 2\theta (1 - \cos 2\theta) (1 - P_3) \text{Im}[F_c^* \langle Q_L \rangle] \right\} \right. \\ & \quad \left. + \left\{ (1 + P_3) + (1 - P_3) \cos 2\theta \right\} \text{Im}[F_c^* \langle Q_S \rangle] \right\} \end{aligned} \quad (3.27)$$

となる^{*41)}。次に、試料の磁気モーメントをそろえるために磁場をかける。ここでは、散乱面内に磁場をかける^{*42)}。その結果、磁気モーメントも磁場方向を向く。したがって、(3.27) のうち有限の値が残るのは、 $(\hat{k} + \hat{k}')$ や $(\hat{k} - \hat{k}')$ を含む項である。 $(\hat{k} \times \hat{k}')$ は散乱面と垂直なので、 P_3 を含む最後の磁気散乱項は消える。

^{*38)} 中性子散乱では核散乱と磁気散乱の散乱長が同程度であるため、格子の Bragg ピークの上に重なった磁気散乱のピークを観測することは容易であるが、X 線ではそれは極めて困難である。

^{*39)} このような巧みな利用法を他にも考え出せるとよい。

^{*40)} 実用例も含めた詳しい解説は文献 [3, 6, 7]、実験例は [8]。ただし、これらは移相子ではなく、Bending Magnet からの生の放射光が、水平面の上下でわずかに円偏光成分をもち、楕円偏光になることを利用している。

^{*41)} $\sin^2 2\theta = 1 - \cos^2 2\theta = (1 + \cos 2\theta)(1 - \cos 2\theta)$ 。

^{*42)} 散乱面内に磁場をかけるというのが、ある意味で特殊である。図 4.3 のような一般的な回折実験の配置を想定したときに、散乱面内に磁場をかけることが現実には難しいことが想像できるだろう。磁場をかけることと、 2θ 角の範囲を広くとることと、極低温まで温度を下げることを同時に実現するのは難しい。文献 [6, 7, 8] での実験は KEK-PF に設置された専用の装置での実験である。 $2\theta = 90^\circ$ に固定し、最大磁場 2 T の横磁場電磁石を使っている。

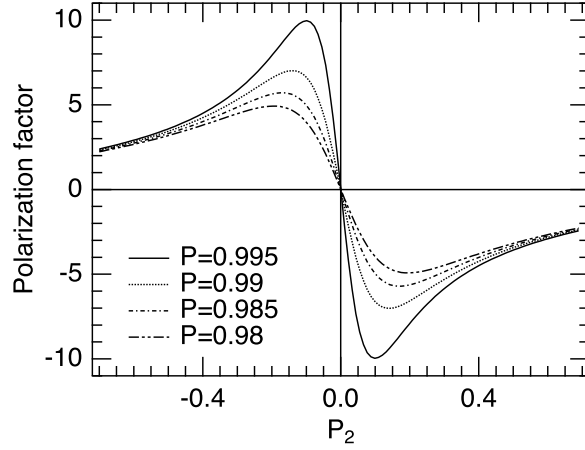


図 3.1: 偏光度 P を一定としたときの円偏光度 P_2 に対する偏光度因子 h_p の変化。

次に、磁場方向を反転する。すると、磁気モーメントの向きも反転するので、 P_2 の項は符号が反転する。第 1 項の Thomson 散乱項は磁場によらないので、磁場反転しても変わらない。したがって、プラス磁場のときの強度を I_+ 、マイナス磁場のときの強度を I_- とすると、

$$\begin{aligned}
 I_+ + I_- &= \{2 - (1 - P_3) \sin^2 2\theta\} |F_c|^2 \\
 I_+ - I_- &= \tau P_2 (1 - \cos 2\theta) \left[(\hat{\mathbf{k}} - \hat{\mathbf{k}}') \cdot \{(1 - \cos 2\theta) \operatorname{Re}[F_c^* \langle \mathbf{Q}_S \rangle]\} \right. \\
 &\quad \left. - (\hat{\mathbf{k}} + \hat{\mathbf{k}}') \cdot \{(1 + \cos 2\theta) \operatorname{Re}[F_c^* (\langle \mathbf{Q}_S \rangle + 2\langle \mathbf{Q}_L \rangle)]\} \right] \\
 &= -2\tau P_2 (1 - \cos 2\theta) \left\{ (\hat{\mathbf{k}} \cos 2\theta + \hat{\mathbf{k}}') \cdot \operatorname{Re}[F_c^* \langle \mathbf{Q}_S \rangle] + (1 + \cos 2\theta) (\hat{\mathbf{k}} + \hat{\mathbf{k}}') \cdot \operatorname{Re}[F_c^* \langle \mathbf{Q}_L \rangle] \right\} \quad (3.28)
 \end{aligned}$$

となる。これらの比を **Flipping Ratio** とよび、次のように表される。

$$\begin{aligned}
 R &= \frac{I_+ - I_-}{I_+ + I_-} \\
 &= \frac{-2\tau P_2 (1 - \cos 2\theta)}{2 - (1 - P_3) \sin^2 2\theta} \left\{ (\hat{\mathbf{k}} \cos 2\theta + \hat{\mathbf{k}}') \cdot \operatorname{Re}\left(\frac{\langle \mathbf{Q}_S \rangle}{F_c}\right) + (1 + \cos 2\theta) (\hat{\mathbf{k}} + \hat{\mathbf{k}}') \cdot \operatorname{Re}\left(\frac{\langle \mathbf{Q}_L \rangle}{F_c}\right) \right\} \quad (3.29)
 \end{aligned}$$

3.6.2 偏光度因子

ここで (3.6.1) の $\{ \}$ の前についている係数に着目する。この係数が大きいほど、干渉効果における磁気散乱の寄与が大きくなる。

$$h_p = \frac{-P_2 (1 - \cos 2\theta)}{2 - (1 - P_3) \sin^2 2\theta} \quad (3.30)$$

のような因子を定義しよう。直感的には、Flipping Ratio の測定には左右円偏光を用いるものと思われるが、しかし、この因子は、たとえ完全円偏光 ($P_2 = \pm 1, P_3 = 0$) であったとしても、最大で 1.2 程度にしかならない。それに対し、 $2\theta = 90^\circ$ にして、入射 X 線の偏光度を π 直線偏光 ($P_3 \rightarrow -1, P_2 \rightarrow 0$) に近づけると、 h_p は発散的に増大する。 $2\theta = 90^\circ$ のときの、

$$h_p = \frac{-P_2}{1 + P_3} \quad (3.31)$$

を偏光度因子 (Polarization factor) と呼ぶことにし、全体の偏光度 $P = \sqrt{P_2^2 + P_3^2}$ を一定にとったときに、 h_p を P_2 の変化に対してプロットしたのが図 3.6.1 である。実際のビームでは完全な偏光度 1 を得ることはないから、 $P_2 \rightarrow 0$ に向かって発散することではなく、この図のようにある P_2 のところで極大を持つ。計算によると、 $P_3 = -P^2$ のときに極大値 $h_p(\max) = P/\sqrt{1 - P^2}$ をとる。

3.6.3 磁場方向と観測される磁気モーメント： $2\theta = 90^\circ$

$2\theta = 90^\circ$ のとき、どちら方向に磁場をかけて測定するかで、観測する磁気モーメントの種類が異なってくる。(3.29) より、次の3つのケースが考えられる。

1. 入射 X 線の方向に磁場をかけるとき ($\mathbf{H} \parallel \hat{\mathbf{k}}$):

$$R = 2\tau h_p \operatorname{Re}\left(\frac{\langle \mathbf{Q}_L \rangle}{F_c}\right) \quad (3.32)$$

この場合、軌道磁気モーメントだけを観測することになる。

2. 反射 X 線の方向に磁場をかけるとき ($\mathbf{H} \parallel \hat{\mathbf{k}}'$):

$$R = 2\tau h_p \left\{ \operatorname{Re}\left(\frac{\langle \mathbf{Q}_S \rangle}{F_c}\right) + \operatorname{Re}\left(\frac{\langle \mathbf{Q}_L \rangle}{F_c}\right) \right\}$$

この場合、全磁気モーメントを観測することになる。

3. 入射 X 線と 45° をなす方向（散乱ベクトル方向）に磁場をかけるとき: ($\mathbf{H} \parallel \hat{\mathbf{k}} - \hat{\mathbf{k}}'$),

$$R = 2\tau h_p \frac{1}{\sqrt{2}} \operatorname{Re}\left(\frac{\langle \mathbf{Q}_S \rangle}{F_c}\right)$$

この場合、スピン磁気モーメントだけを観測することになる。

測定での統計誤差について (3.29) をみるとわかるように、Flipping Ratio で測定されるのは、磁気構造因子と結晶構造因子との比に τ がかかったものであるから、いくら偏光度因子 h_p を最大にしたところで、小さいものはやはり小さい。そこで統計をできるだけ稼がなければならないのだが、どれくらい必要なのか考えてみる。 $R = (I_+ - I_-)/(I_+ + I_-)$ によって R を求めるとき、単純な誤差伝播の法則から、

$$\frac{\Delta R}{R} = \sqrt{\frac{1 + R^2}{(I_+ + I_-)R^2}} \quad (3.33)$$

と見積もられる。統計誤差 1 割、すなわち $\Delta R/R = 0.1$ を目指すとすると、

$$(I_+ + I_-) \approx 100 \times \left(1 + \frac{1}{R^2}\right) \quad (3.34)$$

であればよい。たとえば約 $2\mu_B$ の磁気モーメントを持つ鉄の場合で $R \approx 0.01$ であるから、 $(I_+ + I_-) \approx 10^6$ のカウント数をためればよいことになる。例えば 1000cps のカウントレートで測定すれば、約 17 分でこれに到達できることになる^{*43)}。

縦磁場は? 実際に、横磁場をかけて $2\theta = 90^\circ$ での測定をするためには、その目的に作られた特殊な磁場装置が必要であり [6, 7], 汎用の縦磁場マグネットでは不可能である。図 4.3 のような一般の実験配置で、試料を極低温まで下げ、かつ磁場をかけて、広い 2θ 領域で回折実験を行うには、散乱面と垂直な方向に磁場をかける縦磁場マグネットを使うのがふつうである。では、縦磁場で強磁性の磁気散乱は検出できるのだろうか。

式 (3.26) をみると、 $(\hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}')$ の項を使わなければならないだろう。関係してくるのは P_3 である。しかし、この式をながめていても、なかなかうまいやり方はないように思う。うまい方法があれば、革新的である。

^{*43)} 実際はどうかはやってみないとわかりません。