解説

X 線多波（n 波）動力学理論とその数値解法および放射光実験による検証

沖津康平
東京大学工学系研究科総合研究機構　〒113-8656 東京都文京区弥生 2-11-16

要旨　完全ないしは完全に近い結晶に入射した X 線の振る舞いは，動力学的回折理論（動力学理論）によって記述される。入射し透過する X 線と，ひとつのブラッグ反射波のみが強いとする，2 波動力学理論には，100年に及ぶ蓄積があるが，3 つ以上の波が同時に強い多波（n 波）ケースの研究人口は少ない。筆者は，高木方程式（T–T 方程式）を多波ケースに拡張し，数値解法を研究，X 線の偏光状態を制御した放射光実験により，その検証を行ってきた。エバルト-ラウエの動力学理論（E–L 理論）と T–T 方程式が，多波ケースにおいてもフーリエ変換で記述される等価な関係にあることを示し，計算および実験の手法と結果について解説する。

1. はじめに

完全結晶で回折される X 線の振る舞いを記述する理論は動力学的回折理論（動力学理論）とよばれ，1912年にラウエによって，結晶による X 線の回折現象が発見された直後の1910年代には，ダーウィン[1,2]やエバルト[3]らによって理論の基礎が与えられた。今日，最も広く用いられている動力学理論は，エバルトによってその基礎が与えられ，1931年，ラウエが完成させた[4]エバルト-ラウエ動力学理論（E–L 理論）である。ラウエによって与えられた動力学理論基本方程式[4]に，入射 X 線とひとつの反射 X 線のみが強いとする 2 波近似を適用した，2 波の E–L 理論が，多くの教科書に記述されている[5-12]。

一方，1962年，高木によって発表された[13-16]高木-トウパンの式（T–T理論，T–T 方程式）は，結晶格子歪みを取り扱える理論として，当時黎明期にあった半導体産業から，シリコン結晶の評価手段として広く受け入れられ，様々な結晶格子欠陥に対する，X 線トポグラフ図形の計算機シミュレーションが行われた[17,18]。

ひとつの反射面がブラッグの反射条件を満たすとき，逆空間では，逆格子原点 H_0 とひとつの逆格子点 H_1 がエバルト球上に存在するが，$\overrightarrow{H_0H_1}$ 軸周りに結晶を回転させると，H_0, H_1 以外の逆格子点がエバルト球上に載るようにできることは，容易に理解できる。$\overrightarrow{H_0H_1}$ 軸周りに結晶を回転させ，$\overrightarrow{H_0H_1}$ による反射 X 線の強度を測定するスキャンは，1937年レニンガー[19]によって最初に報告されたことから，レニンガースキャンとよばれる。

また，X 線スペクトロスコピーにおいては，シリコンやダイヤモンドが分光結晶として用いられるが，特定の光子エネルギーで X 線反射強度に不連続が見られることがあり，グリッチ（glitch）とよばれている。「glitch」は，故障，不具合といった意味の普通名詞である。分光結晶の回転によりエバルト球は伸縮するが，特定の光子エネルギーで H_0, H_1 以外の逆格子点がエバルト球の上に載ったときに，グリッチが発生する。

H_0, H_1, $\cdots$, H_{n-1} の逆格子点が同時にエバルト球上にあり，n 個の波が同時に強いケースを n 波ケースとよぶことにする。エバルト-ラウエ理論が，n 波ケースに拡張されたのは，1967–1968年だった[20-23]。コレラによって数値解が初めて与えられたのは1974年のことである[24]。

一方，T–T 理論の n 波ケースへの拡張は，随分遅れた。偏光の取扱が厄介であるため，1987年，偏光を無視した 3 波ケースへの拡張が行われ[25]，1998年に偏光を考慮する 3 波ケースの方程式[26]が初めて報告された。偏光の効果を考慮しての，$n \in \{3, 4, 6, 8, 12\}$ の n 波ケースへの拡張[27]と，計算機による数値解法の開発，および 6 波ケースでの放射光によるピンホールトポグラフ実験結果との比較による検証[28-30]は2003年，筆者らによる報告が初めてとなった。以降，2012年までに $n \in \{3, 4, 5, 6, 8, 12\}$ の n 波ケースについて，計算機シミュレーションと実験結果のよい一致を報告してきた[31]。

2005年に最初に報告したことであるが[32]，E–L 理論と T–T 理論の間には，フーリエ変換で記述される単純な関係があり，等価である。いずれもラウエによる動力学理論基本方程式[4]から導出されているので，当然なのであるが，このことが十分に認識されていなかったことが，T–T 理論の n 波ケースへの拡張が遅れた主な原因ではないかと思われる。

本稿では，ラウエの動力学理論基本方程式から，まず n 波 E–L 理論を導出し，これをフーリエ変換することで，n 波 T–T 方程式を導出する。逆に n 波 T–T 方程式をフーリエ変換して n 波 E–L 理論を導出できることから，E–L

理論とT–T理論が等価であること[31,32]を，明示的に記述する。

n 波の動力学的回折は，E–L理論とT–T方程式のどちらでも記述でき，数値解を求めることができる。そして，それぞれに，長所，短所がある。その事を理解した上で，これらを使い分けるべきだ，というのが筆者の見解である。

世界的に現在最も広く読まれている動力学理論の教科書は，オーティエによる著書[11]だと思われる。500ページ以上の大著であるが，多波ケース（n 波ケース）に関する記述は，わずか24ページである。多波ケースに特化して記述した教科書としては，チャンによる2004年の著書[33]がある。ピンスカーの1978年の著書[8]には，多波のE–L理論に関するやや詳しい記述がある。レビューとしては，ベッカートとヒュマーによるもの[34,35]，コレラによるもの[36,37]がある。

2. エバルト–ラウエ（E–L）$_n$ 波理論の導出

次の式は，ラウエによって導出された，動力学理論基本方程式である。

$$\frac{k_i^2-K^2}{k_i^2}\boldsymbol{\mathcal{D}}_i=\sum_j \chi_{h_i-h_j}[\boldsymbol{\mathcal{D}}_j]_{\perp \mathbf{k}_i}. \tag{1}$$

k_i は，i 番目のブロッホ波の波数，波数ベクトルは，$\mathbf{k}_i=\mathbf{k}_0+\mathbf{h}_i$ である。$\mathbf{k}_0$ は，前方回折波の波数ベクトル，$\mathbf{h}_i$ は散乱ベクトルである。$K(=1/\lambda)$ は，入射X線の真空における波数で，λ は波長である。$\boldsymbol{\mathcal{D}}_i$ と $\boldsymbol{\mathcal{D}}_j$ は，i 番目と j 番目のブロッホ波の複素振幅ベクトルである。$\sum_j$ は，j に関する無限のサンメーションである。$\chi_{h_i-h_j}$ は，電気分極率のフーリエ係数，$[\boldsymbol{\mathcal{D}}_j]_{\perp \mathbf{k}_i}$ は，複素振幅ベクトル $\boldsymbol{\mathcal{D}}_j$ の $\mathbf{k}_i$ に垂直な成分である。

$k_i+K\approx 2k_i$ の近似を式(1)に適用して，次の式が得られる。

$$\xi_i\,\boldsymbol{\mathcal{D}}_i=\frac{K}{2}\sum_j \chi_{h_i-h_j}[\boldsymbol{\mathcal{D}}_j]_{\perp \mathbf{k}_i},\ \text{where}\ \xi_i=k_i-K. \tag{2}$$

電気変位ベクトル $\boldsymbol{\mathcal{D}}_i$，$\boldsymbol{\mathcal{D}}_j$ は，スカラー振幅の1次結合で次のように表すことができる。

$$\boldsymbol{\mathcal{D}}_i=\mathcal{D}_i^{(0)}\mathbf{e}_i^{(0)}+\mathcal{D}_i^{(1)}\mathbf{e}_i^{(1)}, \tag{3a}$$
$$\boldsymbol{\mathcal{D}}_j=\mathcal{D}_j^{(0)}\mathbf{e}_j^{(0)}+\mathcal{D}_j^{(1)}\mathbf{e}_j^{(1)}. \tag{3b}$$

$\mathbf{s}_i$ が $\mathbf{k}_i$ 方向の単位ベクトルであるとき，$\mathbf{s}_i$ に垂直な単位ベクトル $\mathbf{e}_i^{(0)}$ と $\mathbf{e}_i^{(1)}$ は，$\mathbf{s}_i$, $\mathbf{e}_i^{(0)}$, $\mathbf{e}_i^{(1)}$ が，右手直交系をなすように定義する。j についても同様である。

逆空間に作図した **Fig. 1** を参照しながら，以下を記述する。n 個の逆格子点が同一円上に存在する場合に限定して，最も対称性が高い立方晶に対して n の値を検討すると，$n\in\{3, 4, 5, 6, 8, 12\}$ となる。n 個以外の逆格子点はエバルト球表面から十分に遠いという近似を適用する。La_0（ラウエ点）は，H_i（$i\in\{0, 1, \cdots, n-1\}$）からの距離が K（$=1/\lambda$）である点，Pl_i は，H_i を中心とする，半径 K の球面を近似する平面である。Pl_0 と Pl_3 のみを描いてある。ラウエ点は，のちに $|\overrightarrow{\mathrm{La}_0\mathrm{H}_i}|\neq K$ の場合にも適用できるよう理論を拡張するので，あえて La_0 とする。

P_1 は Pl_0 上にあり，入射波の波数ベクトルの始点（終点は H_0）である。また，偏光因子 S と C を次のように定義する。

$$\mathbf{e}_j^{(m)}=S_{i,j}^{(m)}\mathbf{s}_i+C_{i,j}^{(0,m)}\mathbf{e}_i^{(0)}+C_{i,j}^{(1,m)}\mathbf{e}_i^{(1)}. \tag{4a}$$

したがって，

$$S_{i,j}^{(m)}=\mathbf{s}_i\cdot\mathbf{e}_j^{(m)}, \tag{4b}$$
$$C_{i,j}^{(0,m)}=\mathbf{e}_i^{(0)}\cdot\mathbf{e}_j^{(m)}, \tag{4c}$$
$$C_{i,j}^{(1,m)}=\mathbf{e}_i^{(1)}\cdot\mathbf{e}_j^{(m)}. \tag{4d}$$

式(2)の左辺と右辺に，それぞれ，式(3a)と(3b)を代入して次の式を得る。

$$\begin{aligned}&\xi_i(\mathcal{D}_i^{(0)}\mathbf{e}_i^{(0)}+\mathcal{D}_i^{(1)}\mathbf{e}_i^{(1)})\\&\quad=\frac{K}{2}\sum_{j=0}^{n-1}\chi_{h_i-h_j}\left[\mathcal{D}_j^{(0)}\mathbf{e}_j^{(0)}+\mathcal{D}_j^{(1)}\mathbf{e}_j^{(1)}\right]_{\perp \mathbf{k}_i}.\end{aligned} \tag{5}$$

式(5)右辺に式(4a)を代入して $\mathbf{e}_i^{(l)}$ の項を比較することにより，

$$\xi_i\mathcal{D}_i^{(l)}=\frac{K}{2}\sum_{j=0}^{n-1}\chi_{h_i-h_j}\sum_{m=0}^{1-1}C_{i,j}^{(l,m)}\mathcal{D}_j^{(m)}. \tag{6}$$

$\overrightarrow{\mathrm{P}_1'\mathrm{P}_1}$ は，X線入射側結晶表面の下向き単位法線ベクトル $\mathbf{n}_z$ に平行で，次のように表されるものとする。

$$\overrightarrow{\mathrm{P}_1'\mathrm{P}_1}=\xi\mathbf{n}_z. \tag{7}$$

$\beta^{(0)}$ と $\beta^{(1)}$ は，X線入射角の厳密な n 波条件からの角度のズレで，**Fig. 1** を参照して，

$$\overrightarrow{\mathrm{P}_1\mathrm{La}_0}=K\beta^{(0)}\mathbf{e}_0^{(0)}+K\beta^{(1)}\mathbf{e}_0^{(1)}. \tag{8}$$

ξ_i（$=k_i-K$）は，$\mathbf{s}_i$ と $\mathbf{k}_i-\mathbf{K}_i$ の内積をとることにより得られる。ここで，$\mathbf{k}_i=\overrightarrow{\mathrm{P}_1'\mathrm{H}_i}$, $\mathbf{K}_i=\overrightarrow{\mathrm{La}_0\mathrm{H}_i}$である。式(7)と式(8)の足し算と，$\mathbf{s}_i$ の内積をとって，式(4b)を代入すると，

$$\begin{aligned}\xi_i&=\mathbf{s}_i\cdot(\overrightarrow{\mathrm{P}_1'\mathrm{P}_1}+\overrightarrow{\mathrm{P}_1\mathrm{La}_0})\\&=\xi\mathbf{s}_i\cdot\mathbf{n}_z+K\beta^{(0)}\mathbf{s}_i\cdot\mathbf{e}_0^{(0)}+K\beta^{(1)}\mathbf{s}_i\cdot\mathbf{e}_0^{(1)}\end{aligned}$$

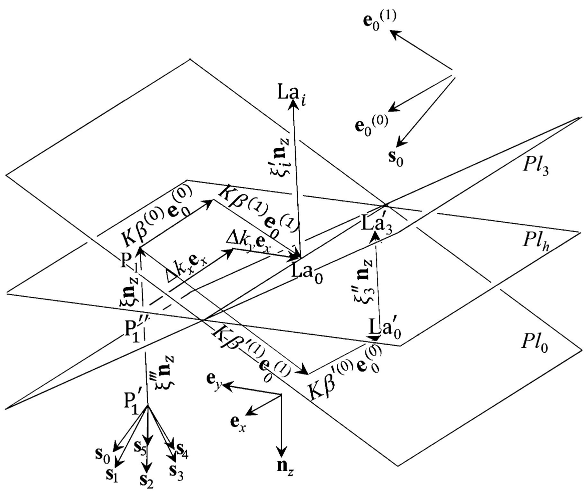

Fig. 1 Geometry around the Laue point La_0. Pl_0 and Pl_3 are planes whose distance from H_0 and H_3 is K. Pl_h is a plane normal to $\mathbf{n}_z$ (downward surface normal). The Laue point La_0 and point P''_1 exist on Pl_h. Pl_i ($i \neq \{0, 3\}$) were not drawn for simplicity. La_i and La'_i are points whose distance from H_i ($i \in \{0, 1, \cdots, n-1\}$) is K. P'_1 is the initial point of wavevector of the Bloch wave. $\mathrm{P}'_{1,k}$ that appears in equation (51) is the kth numberd P'_1 i.e., the initial point of wavevector of the kth numberd Bloch wave where $k \in \{1, 2, 3, \cdots, 2n\}$.

$$= \xi \cos \Theta_i + K\beta^{(0)} S_{i,0}^{(0)} + K\beta^{(1)} S_{i,0}^{(1)}. \qquad (9)$$

式(9)を式(6)左辺に代入すると，次の式が得られる。

$$\xi \cos \Theta_i \mathcal{D}_i^{(l)} + K\left(S_{i,0}^{(0)}\beta^{(0)} + S_{i,0}^{(1)}\beta^{(1)}\right)\mathcal{D}_i^{(l)} = \frac{K}{2}\sum_{j=0}^{n-1} \chi_{h_i - h_j} \sum_{m=0}^{1} C_{i,j}^{(l,m)} \mathcal{D}_j^{(m)}, \qquad (10)$$

ここで，$i, j \in \{0, 1, \cdots, n-1\}$,
$n \in \{3, 4, 5, 6, 8, 12\}$,
$l, m \in \{0, 1\}$.

Θ_i は，$\mathbf{s}_i$ と $\mathbf{n}_z$ のなす角である。さらに，式(10)の両辺を $\cos \Theta_i$ で割ることにより次の式が得られる。

$$\xi \mathcal{D}_i^{(l)} = -\frac{K}{\cos \Theta_i}\left(S_{i,0}^{(0)}\beta^{(0)} + S_{i,0}^{(1)}\beta^{(1)}\right)\mathcal{D}_i^{(l)} + \frac{K}{2\cos \Theta_i}\sum_{j=0}^{n-1} \chi_{h_i - h_j} \sum_{m=0}^{1} C_{i,j}^{(l,m)} \mathcal{D}_j^{(m)}. \qquad (11)$$

式(11)は，行列とベクトルを用いて，次のように表される。

$$\xi \mathbf{E} \mathscr{D} = \mathbf{A} \mathscr{D}. \qquad (12)$$

$\mathbf{E}$ は，$2n \times 2n$ の単位行列である。$\mathscr{D}$ は，$2n$ 次元の列ベクトルで，その q 番目の要素は $\mathcal{D}_j^{(m)}$（$q = 2j + m + 1$）である。以降，固有ベクトルないしは，固有ベクトルを並べた行列を，花文字で表すこととする。$\mathbf{A}$ は $2n \times 2n$ の正方行列でその p 行 q 列目の要素 $a_{p,q}$（$p = 2i + l + 1$）は次のように与えられる。

$$a_{p,q} = \frac{K}{2\cos \Theta_i}\chi_{h_i - h_j} C_{i,j}^{(l,m)} - \frac{\delta_{p,q} K}{\cos \Theta_i}\left(S_{i,0}^{(0)}\beta^{(0)} + S_{i,0}^{(1)}\beta^{(1)}\right). \qquad (13)$$

ここで，$p = 2i + l + 1$, $\delta_{p,q}$ は，クロネッカーデルタである。式(12)は，$2n$ 組の固有値 ξ と固有ベクトル $\mathscr{D}$ を持つ固有値/固有ベクトル問題である。固有値 ξ が，ブロッホ波の波数ベクトルに制限を与え，固有ベクトルが振幅比を与える。

2 波の E–L 理論も当然，式(12)のように記述されるが「固有値/固有ベクトル問題」という用語は一般に出てこない。2 波 E–L 理論に関する，ほぼすべての著書において，固有値の集合としての分散面の導出が記述されている。まず式(12)を，以下のように変形する。

$$(\mathbf{A} - \xi \mathbf{E})\mathscr{D} = \mathbf{O}. \qquad (14)$$

$\mathbf{O}$ は，すべての成分がゼロの $2n$ 次元の列ベクトルである。

$$\det(\mathbf{A} - \xi \mathbf{E}) = 0. \qquad (15)$$

上の式(15)は，式(14)が $\mathscr{D} = \mathbf{O}$ 以外の解を持つための条件である。2 波ケースの場合，σ 偏光と π 偏光は，干渉し合うことなく別々に取り扱うことができる。さらに，ローレンツ点を定義することにより，式(2)の右辺から $j = i$ の項を消去するのが一般的である。分散面の方程式(15)は，σ 偏光と π 偏光に対して，それぞれ双曲線となる。このため，2 波 E–L 理論は，近似解とはいえ解析的に解ける。

本稿の記述においては，ローレンツ点の定義を行わない。T–T 方程式に $j = i$ の項を残すと，任意形状の結晶に対応するという有利な点があるためである[30]。多波ケースにおける分散面は，ξ に関しての $2n$ 次方程式となり，非常に複雑になる。このこともまた，多波動力学理論の発展を遅らせた要因のひとつである。

n 波 E–L 理論の数値解を最初に与えたのはコレラ[24]である。彼の手法は，ラウエ点を通る，中心 H_i，半径 K の球の湾曲をも考慮するものであり，式(12)の固有値/固有ベクトル問題を解くよりも，ブラッグ条件から大きく離れたところで，高い精度を持つものと考えられる。

Fig. 1 には，$\mathrm{H}_0, \mathrm{H}_1, \mathrm{H}_2, \mathrm{H}_3, \mathrm{H}_4, \mathrm{H}_5$ からの距離が $K(=1/\lambda)$ のラウエ点（La_0）に加えて，H_i（$i \in \{6, 7, \cdots, 17\}$）からの距離が K の La_i を描き加えてある。のちの §5.7 で示す **Fig. 19**のような18波ケースの計算に，La_i の定義が必

要になる。

Fig. 1 で$\overrightarrow{\mathrm{La_0La}_i}$は，$\overrightarrow{\mathrm{P}'_1\mathrm{P}_1}$に平行であり，式(11)の左辺は，$\xi\mathcal{D}_i^{(l)}$から（$\xi+\xi'_i$）$\mathcal{D}_i^{(l)}$（ただし$i<6$のとき$\xi'_i=0$）に置き換える必要がある。式(12)の中の$2n\times 2n$行列の要素を表す式(13)は，次のように書き換えなければならない。

$$a_{p,q}=\frac{K}{2\cos\Theta_i}\chi_{h_i-h_j}C_{i,j}^{(l,m)} -\frac{\delta_{p,q}K}{\cos\Theta_i}\left(S_{i,0}^{(0)}\beta^{(0)}+S_{i,0}^{(1)}\beta^{(1)}\right)-\delta_{p,q}\,\xi'_i, \quad (16)$$
$$\text{where, } \xi'_i=0 \text{ for } i<6.$$

上の式(16)を成分に持つ$2n\times 2n$（$n=18$）の行列を作り，式(12)の固有値/固有ベクトル問題を解き，のちに§3.2に記述する，式(46a)と式(47)から計算した回折プロファイルを高速フーリエ変換して得られたのが，§5.7で示す，**Fig. 18(b)** である。

このことには重要な意味がある。筆者らの2012年の論文[31]まで，T–T方程式の解を得るにあたり，n個の逆格子点がひとつの円周上になければならないという制限を設けてきたが，これを取り払ったのである。

さらに，**Fig. 1** のPl_0上のLa_0でない場所にLa'_0を描き，$\overrightarrow{\mathrm{La}'_0\mathrm{La}'_i}=\xi''_i\mathbf{n}_z$となるように，$Pl_i$上に$\mathrm{La}'_i$（$i\in\{0, 1, 2, \cdots, n-1\}$）を定義する。この場合，$n$波E–L理論を記述する，式(10)に相当する式は，次のようになる。

$$\begin{aligned}&\xi\cos\Theta_i\mathcal{D}_i'^{(l)}+K(S_{i,0}^{(0)}\beta'^{(0)}+S_{i,0}^{(1)}\beta'^{(1)})\mathcal{D}_i'^{(l)}\\&\quad=-\xi''_i\cos\Theta_i\mathcal{D}_i'^{(l)}\\&\qquad+\frac{K}{2}\sum_{j=0}^{n-1}\chi_{h_i-h_j}\sum_{m=0}^{1}C_{i,j}^{(l,m)}\mathcal{D}_j'^{(m)}, \quad (17)\end{aligned}$$

where, $i, j\in\{0, 1, \cdots, n-1\}$,
nは，エバルト球表面近傍の逆格子点の数,
$l, m\in\{0, 1\}$.

$\overrightarrow{\mathrm{P_1La}'_0}=K\beta'^{(0)}\mathbf{e}_0^{(0)}+K\beta'^{(1)}\mathbf{e}_0^{(1)}$である。右辺第1項を左辺に移さなかった理由については，式(33)，(34)を導出した後に記述する。式(11)に相当する式は，次のようになる。

$$\begin{aligned}\xi\mathcal{D}_i'^{(l)}=&-\frac{K}{\cos\Theta_i}(S_{i,0}^{(0)}\beta'^{(0)}+S_{i,0}^{(1)}\beta'^{(1)})\mathcal{D}_i'^{(l)}-\xi''_i\mathcal{D}_i'^{(l)}\\&+\frac{K}{2\cos\Theta_i}\sum_{j=0}^{n-1}\chi_{h_i-h_j}\sum_{m=0}^{1}C_{i,j}^{(l,m)}\mathcal{D}_j'^{(m)}. \quad (18)\end{aligned}$$

また，式(16)を次の式で置き換えることになる。

$$a_{p,q}=\frac{K}{2\cos\Theta_i}\chi_{h_i-h_j}C_{i,j}^{(l,m)} -\frac{\delta_{p,q}K}{\cos\Theta_i}(S_{i,0}^{(0)}\beta'^{(0)}+S_{i,0}^{(1)}\beta'^{(1)})-\delta_{p,q}\xi''_i. \quad (19)$$

上の式(19)は，**Fig. 19** のように二重の円周上に逆格子点が存在しなくても，任意の個数の逆格子点が，エバルト球表面近傍に存在するケースについて，式(12)に代入して，解を求めることができる。

2.1 エバルト–ラウエ理論（E–L理論）からの高木方程式（T–T理論）の導出

この節では，式(10)ないしは式(11)で記述されるn波E–L理論から，n波T–T方程式を導出する。逆空間における積分と実空間における微分の順序の交換，積分とサンメーションの順序の交換が，議論の骨子となる。

$\mathbf{r}$を位置ベクトルだとして，動力学理論の解である全波動場$\tilde{\mathbf{D}}(\mathbf{r})$が，次のように表されるものとする。

$$\tilde{\mathbf{D}}(\mathbf{r})=\sum_{i=0}^{n-1}\sum_{l=0}^{1}\mathbf{e}_i^{(l)}D_i^{(l)}(\mathbf{r})\exp\left(-\mathrm{i}2\pi\overrightarrow{\mathrm{La_0H}_i}\cdot\mathbf{r}\right), \quad (20)$$

以下の記述のため，位置ベクトル$\mathbf{r}$が，$\mathbf{s}_i$, $\mathbf{e}_i^{(0)}$, $\mathbf{e}_i^{(1)}$の1次結合として次のように表されるものとする。

$$\mathbf{r}=s_i\mathbf{s}_i+e_i^{(0)}\mathbf{e}_i^{(0)}+e_i^{(1)}\mathbf{e}_i^{(1)}. \quad (21)$$

偏光状態lのi番目の波は，ブロッホ波の振幅$\mathcal{D}_i^{(l)}$によって次のように記述することができる。

$$\begin{aligned}&\mathcal{D}_i^{(l)}(\Delta\mathbf{k})\exp\left(-\mathrm{i}2\pi\overrightarrow{\mathrm{P}'_1\mathrm{H}_i}\cdot\mathbf{r}\right)\\&\quad=\mathcal{D}_i^{(l)}(\Delta\mathbf{k})\exp\left(-\mathrm{i}2\pi\Delta\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}\right)\\&\qquad\times\exp\left(-\mathrm{i}2\pi\overrightarrow{\mathrm{La_0H}_i}\cdot\mathbf{r}\right),\\&\qquad\text{where } \Delta\mathbf{k}=\overrightarrow{\mathrm{P}'_1\mathrm{La}_0}. \quad (22)\end{aligned}$$

逆空間でフーリエ積分を行う際，これまで$\mathcal{D}_i^{(l)}$で表してきたブロッホ波の振幅を，これが$\Delta\mathbf{k}$の関数であることを明示的に示すため，$\mathcal{D}_i^{(l)}(\Delta\mathbf{k})$と記述することにする。また，後の記述のため，式(7)と式(8)から，$\Delta\mathbf{k}$が次のように表されることを確認しておく。

$$\Delta\mathbf{k}=\xi\mathbf{n}_z+K\beta^{(0)}\mathbf{e}_0^{(0)}+K\beta^{(1)}\mathbf{e}_0^{(1)}. \quad (23)$$

式(22)の$\mathcal{D}_i^{(l)}(\Delta\mathbf{k})$は，どのような関数であっても構わない。例えば，入射X線の振幅が，**Fig. 1** のPl_0上の1点でのみゼロでない，ディラックのデルタ関数であれば平面波入射，振幅も位相も変わらない一定値の場合は，実空間ではデルタ関数となるため球面波入射となる。

式(20)右辺の振幅$D_i^{(l)}(\mathbf{r})$と，iをjに，lをmに置き換えた振幅$D_j^{(m)}(\mathbf{r})$は，ブロッホ波をコヒーレントに重ね合わせたものだと考えられるため，次のように表される。

$$D_i^{(l)}(\mathbf{r}) = \int_{\Delta\mathbf{k}}^{D.S.} \mathcal{D}_i^{(l)}(\Delta\mathbf{k}) \exp\left(-\mathrm{i}2\pi\Delta\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}\right) \mathrm{d}S. \qquad (24a)$$

$$D_j^{(m)}(\mathbf{r}) = \int_{\Delta\mathbf{k}}^{D.S.} \mathcal{D}_j^{(m)}(\Delta\mathbf{k}) \exp\left(-\mathrm{i}2\pi\Delta\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}\right) \mathrm{d}S. \qquad (24b)$$

ここで，$\int_{\Delta\mathbf{k}}^{D.S.} \mathrm{d}S$ は，分散面全体にわたる積分である。分散面と固有ベクトルは，$2n$ 組あるので，それらの番号を k（$k\in\{1, 2, \cdots 2n\}$）として，$\sum_{k=1}^{2n}$ のサンメーションをとる記述もあり得るが，式(24a)，(24b)においては，のちの式変形の簡素化のため，$\int_{\Delta\mathbf{k}}^{D.S.} \mathrm{d}S$ の積分の中に$\sum_{k=1}^{2n}$ のサンメーションを含むものととして記述している。$D_i^{(l)}(\mathbf{r})$ と $D_j^{(m)}(\mathbf{r})$ は，それぞれ，$\exp(-\mathrm{i}2\pi\overrightarrow{\mathrm{La_0H}_i}\cdot\mathbf{r})\mathbf{e}_i^{(l)}$ と $\exp(-\mathrm{i}2\pi\overrightarrow{\mathrm{La_0H}_j}\cdot\mathbf{r})\mathbf{e}_j^{(m)}$ の波を変調する振幅である。式(21)，(23)を式(24a)に代入して，式(4b)の偏光因子を考慮すると，

$$D_i^{(l)}(\mathbf{r}) = \int_{\Delta\mathbf{k}}^{D.S.} \mathcal{D}_i^{(l)}(\Delta\mathbf{k}) \times \exp\left\{-\mathrm{i}2\pi\left[\left(\xi\cos\Theta_i + K\beta^{(0)}S_{i,0}^{(0)} + K\beta^{(1)}S_{i,0}^{(1)}\right)s_i + f_i(e_i^{(0)}, e_i^{(1)})\right]\right\}\mathrm{d}S. \qquad (25)$$

ここで，$f_i(e_i^{(0)}, e_i^{(1)})$ は，$e_i^{(0)}, e_i^{(1)}$ の関数で，s_i に依存しない項である。よって，$\partial D_i^{(l)}(\mathbf{r})/\partial s_i$ は，次のように計算される。

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial s_i}D_i^{(l)}(\mathbf{r}) &= \frac{\partial}{\partial s_i}\int_{\Delta\mathbf{k}}^{D.S.} \mathcal{D}_i^{(l)}(\Delta\mathbf{k}) \exp\left(-\mathrm{i}2\pi\Delta\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}\right)\mathrm{d}S \\ &= \int_{\Delta\mathbf{k}}^{D.S.} \frac{\partial}{\partial s_i}\left[\mathcal{D}_i^{(l)}(\Delta\mathbf{k}) \exp\left(-\mathrm{i}2\pi\Delta\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}\right)\right]\mathrm{d}S \\ &= -\mathrm{i}2\pi\int_{\Delta\mathbf{k}}^{D.S.}\left[\xi\cos\Theta_i + K\left(S_{i,0}^{(0)}\beta^{(0)} + S_{i,0}^{(1)}\beta^{(1)}\right)\right] \\ &\quad\times\mathcal{D}_i^{(l)}(\Delta\mathbf{k}) \exp\left(-\mathrm{i}2\pi\Delta\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}\right)\mathrm{d}S. \qquad (26)\end{aligned}$$

一方，式(23)の $\Delta\mathbf{k}$ の代わりに，$\Delta\mathbf{k}'$ を次のように定義する。

$$\begin{aligned}\Delta\mathbf{k}' &= \overrightarrow{\mathrm{P}'_1\mathrm{La}_0} \\ &= \xi\mathbf{n}_z + K\beta'^{(0)}\mathbf{e}_0^{(0)} + K\beta'^{(1)}\mathbf{e}_0^{(1)}. \qquad (27)\end{aligned}$$

式(24)，(25)で，$\Delta\mathbf{k}, D_i^{(l)}(\mathbf{r}), \mathcal{D}_i^{(l)}(\Delta\mathbf{k}), D_j^{(m)}(\mathbf{r}), \mathcal{D}_j^{(m)}(\Delta\mathbf{k}), \beta^{(0)}, \beta^{(1)}$ をそれぞれ，$\Delta\mathbf{k}', D_i'^{(l)}(\mathbf{r}), \mathcal{D}_i'^{(l)}(\Delta\mathbf{k}'), D_j'^{(m)}(\mathbf{r}), \mathcal{D}_j'^{(m)}(\Delta\mathbf{k}'), \beta'^{(0)}, \beta'^{(1)}$ で置き換えても，同様な変形ができるので，式(26)と同じ形の次の式が得られる。

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial s_i}D_i'^{(l)}(\mathbf{r}) &= -\mathrm{i}2\pi\int_{\Delta\mathbf{k}'}^{D.S.}\left[\xi\cos\Theta_i + K\left(S_{i,0}^{(0)}\beta'^{(0)} + S_{i,0}^{(1)}\beta'^{(1)}\right)\right] \\ &\quad\times\mathcal{D}_i'^{(l)}(\Delta\mathbf{k}')\exp\left(-\mathrm{i}2\pi\Delta\mathbf{k}'\cdot\mathbf{r}\right)\mathrm{d}S. \qquad (28)\end{aligned}$$

式(26)の $D_i^{(l)}(\mathbf{r})$ が，n 個の逆格子点が同一円周上に存在する場合に，$\exp(-\mathrm{i}2\pi\overrightarrow{\mathrm{La_0H}_i}\cdot\mathbf{r})\mathbf{e}_i^{(l)}$ の波を変調する振幅なのに対して，式(28)の $D_i'^{(l)}(\mathbf{r})$ は，$\exp(-\mathrm{i}2\pi\overrightarrow{\mathrm{La'_0H}_i}\cdot\mathbf{r})\mathbf{e}_i^{(l)}$ を変調する振幅であり，エバルト球表面近傍に存在する逆格子点をすべて考慮する場合へと，T-T 方程式の適用範囲をのちに一般化するために準備した。

式(10)を式(26)に代入して

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial s_s}D_i^{(l)}(\mathbf{r}) &= -\mathrm{i}\pi K\int_{\Delta\mathbf{k}}^{D.S.}\sum_{j=0}^{n-1}\chi_{h_i-h_j}\sum_{m=0}^{1}C_{i,j}^{(l,m)} \\ &\quad\times\mathcal{D}_j^{(m)}(\Delta\mathbf{k})\exp\left(-\mathrm{i}2\pi\Delta\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}\right)\mathrm{d}S \\ &= -\mathrm{i}\pi K\sum_{j=0}^{n-1}\chi_{h_i-h_j}\sum_{m=0}^{1}C_{i,j}^{(l,m)} \\ &\quad\times\int_{\Delta\mathbf{k}}^{D.S.}\mathcal{D}_j^{(m)}(\Delta\mathbf{k})\exp\left(-\mathrm{i}2\pi\Delta\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}\right)\mathrm{d}S. \qquad (29)\end{aligned}$$

式(24b)を式(29)に代入すると，次の式が得られる

$$\frac{\partial}{\partial s_i}D_i^{(l)}(\mathbf{r}) = -\mathrm{i}\pi K\sum_{j=0}^{n-1}\chi_{h_i-h_j}\sum_{m=0}^{1}C_{i,j}^{(l,m)}D_j^{(m)}(\mathbf{r}), \qquad (30)$$

$$\begin{aligned}&\text{where, } i, j\in\{0, 1, \cdots, n-1\}, \\ &\quad n\in\{3, 4, 5, 6, 8, 12\}, \\ &\quad l, m\in\{0, 1\}.\end{aligned}$$

上の式(30)は，n 個の逆格子点が同一円周上にある場合に対する n 波 T-T 方程式である。

ところで，結晶が完全であるとき，電気分極率は，$\chi(\mathbf{r}) = \sum_i\chi_{h_i}\exp(-\mathrm{i}2\pi\mathbf{h}_i\cdot\mathbf{r})$ のように，フーリエ級数で表される。しかし，結晶に格子変位 $\mathbf{u}(\mathbf{r})$ があるとき，電気分極率は，近似的に $\chi[\mathbf{r}-\mathbf{u}(\mathbf{r})]$ となり，次のように，変形されたフーリエ級数に展開される。

$$\begin{aligned}\chi[\mathbf{r}-\mathbf{u}(\mathbf{r})] &= \sum_i\chi_{h_i}\exp\{-\mathrm{i}2\pi\mathbf{h}_i\cdot[\mathbf{r}-\mathbf{u}(\mathbf{r})]\} \\ &= \sum_i\chi_{h_i}\exp[\mathrm{i}2\pi\mathbf{h}_i\cdot\mathbf{u}(\mathbf{r})]\exp(-\mathrm{i}2\pi\mathbf{h}_i\cdot\mathbf{r}). \qquad (31)\end{aligned}$$

したがって格子変位場 $\mathbf{u}(\mathbf{r})$ を持つ結晶の場合，電気分極率のフーリエ係数は位置ベクトル $\mathbf{r}$ の関数となり，$\chi_{h_i-h_j}\exp[\mathrm{i}2\pi(\mathbf{h}_i-\mathbf{h}_j)\cdot\mathbf{u}(\mathbf{r})]$ のように表される。よって式(30)は，格子変位を伴う結晶に対して次のように書き換えられる。

$$\frac{\partial}{\partial s_i}D_i^{(l)}(\mathbf{r}) = -\mathrm{i}\pi K\sum_{j=0}^{n-1}\chi_{h_i-h_j}\exp[\mathrm{i}2\pi(\mathbf{h}_i-\mathbf{h}_j)\cdot\mathbf{u}(\mathbf{r})] \times\sum_{m=0}^{1}C_{i,j}^{(l,m)}D_j^{(m)}(\mathbf{r}). \tag{32}$$

上の式(32)は，n 個の逆格子点がひとつの円周上に存在する場合の，結晶格子変位を取り扱える n 波 T–T 方程式[29,31]にほかならない。

次に，エバルト球近傍の逆格子点をすべて考慮する場合の n 波 T–T 方程式を導出する。

La'_0 は，式(17)を導出する直前に記述したように，**Fig. 1** の Pl_0 上にある，0 番目の「一般化されたラウエ点」である。先に記述したように，0 番目と i 番目の「一般化されたラウエ点」を結ぶベクトルは $\overrightarrow{\mathrm{La}'_0\mathrm{La}'_i}=\xi''_i\mathbf{n}_z$ である。(**Fig. 1** 参照)。n 個の逆格子点が同一円周上にある場合には，式(10)を式(26)に代入して式(29)を得たが，エバルト球近傍の逆格子点をすべて考慮できるようにするには，式(17)を式(28)に代入する必要がある。得られる式は，次の通りである。

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial s_i}D_i'^{(l)}(\mathbf{r}) &= \mathrm{i}2\pi\xi''_i\cos\Theta_i\int_{\Delta\mathbf{k}'}^{D.S.}\mathcal{D}_i'^{(l)}(\Delta\mathbf{k}')\exp\left[-\mathrm{i}2\pi\Delta\mathbf{k}'\cdot\mathbf{r}\right]\mathrm{d}S \\ &\quad -\mathrm{i}\pi K\int_{\Delta\mathbf{k}'}^{D.S.}\sum_{j=0}^{n-1}\chi_{h_i-h_j}\sum_{m=0}^{1}C_{i,j}^{(l,m)} \\ &\quad \times D_j'^{(m)}(\Delta\mathbf{k}')\exp\left(-\mathrm{i}2\pi\Delta\mathbf{k}'\cdot\mathbf{r}\right)\mathrm{d}S \qquad (33)\\ &= \mathrm{i}2\pi\xi''_i\cos\Theta_i D_i'^{(l)}(\mathbf{r}) \\ &\quad -\mathrm{i}\pi K\sum_{j=0}^{n-1}\chi_{h_i-h_j}\sum_{m=0}^{1}C_{i,j}^{(l,m)}D_j'^{(m)}(\mathbf{r}), \qquad (34)\end{aligned}$$

where, $i, j\in\{0, 1, \cdots, n-1\}$,
n は，エバルト球表面近傍の逆格子点の数，
$l, m\in\{0, 1\}$.

上の式(33)，(34)を導出するにあたり，$\Delta\mathbf{k}'_i=\overrightarrow{\mathrm{P}'_1\mathrm{La}'_i}$ と置き，式(24a)右辺の積分の中身を $\mathcal{D}_i'^{(l)}(\Delta\mathbf{k}'_i)\exp(-\mathrm{i}2\pi\Delta\mathbf{k}'_i\cdot\mathbf{r})$ とすると，一見計算が簡単なように思える。しかしこの場合，方程式の対称性保存のため，式(24b)右辺の積分の中身を $\mathcal{D}_j'^{(m)}(\Delta\mathbf{k}'_j)\exp(-\mathrm{i}2\pi\Delta\mathbf{k}'_j\cdot\mathbf{r})$ とする必要があり，式(33)第 2 項から式(34)第 2 項への変形ができず，うまくいかない。式(17)の右辺第 1 項を左辺に移すと，左辺は $\mathbf{s}_i\cdot\Delta\mathbf{k}'_i$ となるが，これを行わず，左辺を $\mathbf{s}_i\cdot\Delta\mathbf{k}'$ のままにしたのは，このためである。

さらに，式(31)を考慮して，

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial s_i}D_i'^{(l)}(\mathbf{r}) &= \mathrm{i}2\pi\xi''_i\cos\Theta_i D_i'^{(l)}(\mathbf{r}) \\ &\quad -\mathrm{i}\pi K\sum_{j=0}^{n-1}\chi_{h_i-h_j}\exp\left[\mathrm{i}2\pi(\mathbf{h}_i-\mathbf{h}_j)\cdot\mathbf{u}(\mathbf{r})\right] \\ &\quad \times\sum_{m=0}^{1}C_{i,j}^{(l,m)}D_j'^{(m)}(\mathbf{r}). \qquad (35)\end{aligned}$$

上の式(35)は，エバルト球近傍の逆格子点をすべて考慮し，結晶格子歪みを取り扱える n 波 T–T 方程式である。

また，平面波入射条件の際に使いやすい方程式も導出しておく。式(34)における $D_i'^{(l)}(\mathbf{r})$，$D_j'^{(m)}(\mathbf{r})$ は，それぞれ，$\exp(-\mathrm{i}2\pi\overrightarrow{\mathrm{La}'_0\mathrm{H}_i}\cdot\mathbf{r})\,\mathbf{e}_i^{(l)}$，$\exp(-\mathrm{i}2\pi\overrightarrow{\mathrm{La}'_0\mathrm{H}_j}\cdot\mathbf{r})\,\mathbf{e}_j^{(m)}$ の波を変調する振幅である。$D_i''^{(l)}(\mathbf{r})$，$D_j''^{(m)}(\mathbf{r})$ は，それぞれ，$\exp(-\mathrm{i}2\pi\overrightarrow{\mathrm{P}_1\mathrm{H}_i}\cdot\mathbf{r})\,\mathbf{e}_i^{(l)}$ と，$\exp(-\mathrm{i}2\pi\overrightarrow{\mathrm{P}_1\mathrm{H}_j}\cdot\mathbf{r})\,\mathbf{e}_j^{(m)}$ の波を変調する振幅であるとして，**Fig. 1** を参照すると，次の式が成り立つことが理解できる。

$$\begin{aligned}D_i'^{(l)}(\mathbf{r}) &= D_i''^{(l)}(\mathbf{r})\exp\left(-\mathrm{i}2\pi\overrightarrow{\mathrm{P}_1\mathrm{La}'_0}\cdot\mathbf{r}\right) \\ &= D_i''^{(l)}(\mathbf{r})\exp\left[-\mathrm{i}2\pi K(\beta'^{(0)}\mathbf{e}_0^{(0)}+\beta'^{(1)}\mathbf{e}_0^{(1)})\cdot\mathbf{r}\right],\end{aligned} \tag{36a}$$

$$D_j'^{(m)}(\mathbf{r}) = D_j''^{(m)}(\mathbf{r})\exp\left(-\mathrm{i}2\pi\overrightarrow{\mathrm{P}_1\mathrm{La}'_0}\cdot\mathbf{r}\right). \tag{36b}$$

式(36a)の偏微分 $\partial/\partial s_i$ を計算すると，

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial s_i}D_i'^{(l)}(\mathbf{r}) &= \left[\frac{\partial}{\partial s_i}D_i''^{(l)}(\mathbf{r})\right]\exp\left(-\mathrm{i}2\pi\overrightarrow{\mathrm{P}_1\mathrm{La}'_0}\cdot\mathbf{r}\right) \\ &\quad -\mathrm{i}2\pi K(\beta'^{(0)}S_{i,0}^{(0)}+\beta'^{(1)}S_{i,0}^{(1)}) \\ &\quad \times D_i''^{(l)}(\mathbf{r})\exp\left(-\mathrm{i}2\pi\overrightarrow{\mathrm{P}_1\mathrm{La}'_0}\cdot\mathbf{r}\right).\end{aligned} \tag{37}$$

式(36)と式(37)を式(34)に代入して次の式を得る。

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial s_i}D_i''^{(l)}(\mathbf{r}) &= \mathrm{i}2\pi\xi''_i\cos\Theta_i D_i''^{(l)}(\mathbf{r}) \\ &\quad +\mathrm{i}2\pi K(\beta'^{(0)}S_{i,0}^{(0)}+\beta'^{(1)}S_{i,0}^{(1)})D_i''^{(l)}(\mathbf{r}) \\ &\quad -\mathrm{i}\pi K\sum_{j=0}^{n-1}\chi_{h_i-h_j}\sum_{m=0}^{1}C_{i,j}^{(l,m)}D_j''^{(m)}(\mathbf{r}).\end{aligned} \tag{38}$$

上の式(38)は，$\exp(-\mathrm{i}2\pi\overrightarrow{\mathrm{P}_1\mathrm{H}_i}\cdot\mathbf{r})\,\mathbf{e}_i^{(l)}$, $\exp(-\mathrm{i}2\pi\overrightarrow{\mathrm{P}_1\mathrm{H}_j}\cdot\mathbf{r})\,\mathbf{e}_j^{(m)}$ の波を変調する振幅 $D_i''^{(l)}(\mathbf{r})$ および $D_j''^{(m)}(\mathbf{r})$ に対

して成り立つ n 波 T–T 方程式である。上の式(38)を，波数ベクトル $\overrightarrow{\mathrm{P_1H_0}}$ の平面波入射の条件で解く場合，結晶入射側表面で，$D''^{(0)}_0(\mathbf{r})$ または $D''^{(1)}_0(\mathbf{r})$ に，一定の値の境界条件を与えることになる。**Fig. 1**のように，結晶面下向き単位法線ベクトル $\mathbf{n}_z$ に対して垂直な単位ベクトル $\mathbf{e}_x$, $\mathbf{e}_y$ を定義し，位置ベクトルを，$\mathbf{r}=x\mathbf{e}_x+y\mathbf{e}_y+z\mathbf{n}_z$ と記述すると，式(38)を解いて得られる波動場は，x, y に依存せず，z のみの関数となり，$D''^{(l)}_i(z)$, $D''^{(m)}_j(z)$ と表される。また，$\partial D''^{(l)}_i(\mathbf{r})/\partial s_i$ は，次のようになる。

$$\frac{\partial D''^{(l)}_i(\mathbf{r})}{\partial s_i}=\mathbf{s}_i\cdot\left(\frac{\mathrm{d}D''^{(l)}_i(z)}{\mathrm{d}z}\right)\mathbf{n}_z$$
$$=\cos\Theta_i\frac{\mathrm{d}D''^{(l)}_i(z)}{\mathrm{d}z}. \tag{39}$$

式(39)を式(38)に代入すると，次のような連立常微分方程式を得る。

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}z}D''^{(l)}_i(z)$$
$$=\mathrm{i}2\pi\xi''_i D''^{(l)}_i(z)$$
$$+\frac{\mathrm{i}2\pi K}{\cos\Theta_i}\left(\beta'^{(0)}S^{(0)}_{i,0}+\beta'^{(1)}S^{(1)}_{i,0}\right)D''^{(l)}_i(z)$$
$$-\frac{\mathrm{i}\pi K}{\cos\Theta_i}\sum_{j=0}^{n-1}\chi_{h_i-h_j}\sum_{m=0}^{1}C^{(l,m)}_{i,j}D''^{(m)}_j(z). \tag{40}$$

式(40)は，固有値/固有ベクトル問題に書き換えることができ，これを解くことにより解が得られる。このことからも，E–L 理論が T–T 理論と等価であることがわかるのだが，ここでは，詳しくは記述しない。

2.2 高木方程式（T–T 理論）からのエバルト–ラウエ理論（E–L 理論）の導出

この節では，式(10)ないしは式(11)で表される n 波 E–L 理論が n 波 T–T 方程式(30)から導出できることを示す。

平面波 X 線が結晶に入射し，分散面上の $2n$ 個のタイポイントを励起するとき，総波動場 $\tilde{\mathcal{D}}$ は，ブロッホ波のサンメーションとして次のように表される。

$$\tilde{\mathcal{D}}=\sum_{i=0}^{n-1}\sum_{l=0}^{1}\mathbf{e}^{(l)}_i\mathcal{D}^{(l)}_i(\Delta\mathbf{k})\exp\left(-\mathrm{i}2\pi\Delta\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}\right)$$
$$\times\exp\left(-\mathrm{i}2\pi\overrightarrow{\mathrm{La_0H}_i}\cdot\mathbf{r}\right). \tag{41}$$

$D^{(l)}_i(\mathbf{r})=\mathcal{D}^{(l)}_i(\Delta\mathbf{k})\exp\left(-\mathrm{i}2\pi\overrightarrow{\mathrm{P_1H}_i}\cdot\mathbf{r}\right)$, $D^{(m)}_j(\mathbf{r})=\mathcal{D}^{(m)}_j(\Delta\mathbf{k})\exp\left(-\mathrm{i}2\pi\overrightarrow{\mathrm{P_1H}_j}\cdot\mathbf{r}\right)$ のときでも $D^{(l)}_i(\mathbf{r})$，$D^{(m)}_j(\mathbf{r})$ は，高木方程式(30)を満たすので，

$$\frac{\partial}{\partial s_i}\left[\mathcal{D}^{(l)}_i(\Delta\mathbf{k})\exp\left(-\mathrm{i}2\pi\Delta\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}\right)\right]$$
$$=-\mathrm{i}\pi K\sum_{j=0}^{n-1}\chi_{h_i-h_j}$$
$$\times\sum_{m=0}^{1}C^{(l,m)}_{i,j}\left[\mathcal{D}^{(m)}_j(\Delta\mathbf{k})\exp\left(-\mathrm{i}2\pi\Delta\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}\right)\right]. \tag{42}$$

一方，式(42)の左辺は，式(25)を導出したのと同じ手続きで，次のようにも書ける。

$$\frac{\partial}{\partial s_i}\left[\mathcal{D}^{(l)}_i(\Delta\mathbf{k})\exp\left(-\mathrm{i}2\pi\Delta\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}\right)\right]$$
$$=\mathcal{D}^{(l)}_i(\Delta\mathbf{k})\frac{\partial}{\partial s_i}\exp\{-\mathrm{i}2\pi[(\xi\cos\Theta_i$$
$$+K\beta^{(0)}S^{(0)}_{i,0}+K\beta^{(1)}S^{(1)}_{i,0})s_i+f_i(e^{(0)}_i, e^{(1)}_i)]\}$$
$$=-\mathrm{i}2\pi(\xi\cos\Theta_i+K\beta^{(0)}S^{(0)}_{i,0}+K\beta^{(1)}S^{(1)}_{i,0})$$
$$\times\mathcal{D}^{(l)}_i(\Delta\mathbf{k})\exp\left(-\mathrm{i}2\pi\Delta\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}\right). \tag{43}$$

式(42)と式(43)の右辺どうしを比較することにより，式(10)と同じ式が得られる。n 波 E–L 理論と T–T 方程式($n\in\{3, 4, 5, 6, 8, 12\}$)の等価性は，式(24)，式(25)で定義されるフーリエ変換で記述されることが証明された。

筆者が知る限り，E–L 理論と T–T 理論の等価性に関する記述は，オーティエの著書[11] §11.3で，2 波理論についてわずかに言及されているのが，唯一のものである。

3. n 波動力学理論の数値解法

3.1 n 波高木方程式（T–T 理論）の数値解法

Fig. 2(***a***)，**2**(***b***)を参照して，$n=6$ のときの n 波 T–T 方程式(30)を数値的に解く際のアルゴリズムを説明する。後に示す **Fig. 12**の計算機シミュレーション画像を得る場合の手法に例をにして記述する。**Fig. 2**(***a***)のベクトル $\overrightarrow{R^{(0)}_iR^{(1)}}$は，$\mathbf{s}_i$ に平行である。ベクトル $\overrightarrow{R^{(0)}_iR^{(1)}}$ の長さが $|-1/(\chi_0K)|$ と比較して十分小さいとき，完全結晶に対する n 波 T–T 方程式(30)は次の式で近似できる。

$$\frac{D^{(l)}_i(R^{(1)})-D^{(l)}_i(R^{(0)}_i)}{\left|\overrightarrow{R^{(0)}_iR^{(1)}}\right|}$$
$$=-\mathrm{i}\pi K\sum_{j=0}^{n-1}\chi_{h_i-h_j}$$
$$\times\sum_{m=0}^{1}C^{(l,m)}_{i,j}\frac{D^{(m)}_j(R^{(0)}_i)+D^{(m)}_j(R^{(1)})}{2}. \tag{44}$$

上の式(44)は，$2n$ 個の未知数 $D^{(l)}_i(R^{(1)})$ ($i\in\{0, 1, \cdots, n-1\}$, $l\in\{0, 1\}$) を持つ $2n$ 連立 1 次方程式であり，LAPACK の ZGeTRF と ZGeTRS などを用いて，計算機で数値解を求めることができる。

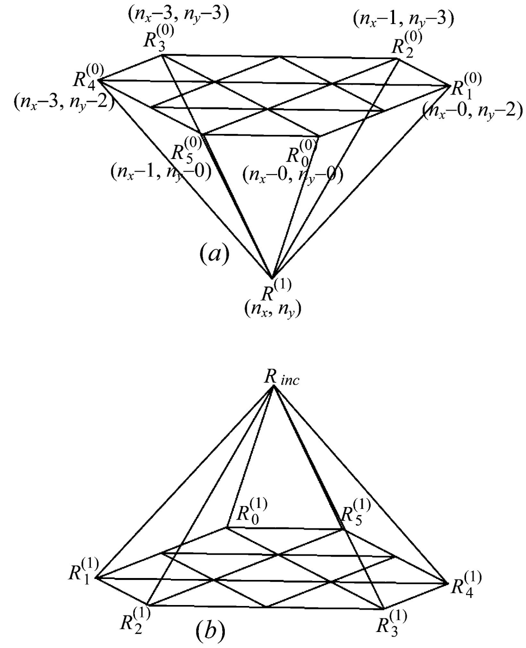

Fig. 2 This figure shows small hexagonal pyramids used when solving the T–T equation (30) in a six-beam case whose results are shown in Fig. 12 [reproduction of Fig. 1 in Okitsu *et al*. (2012)[31)]].

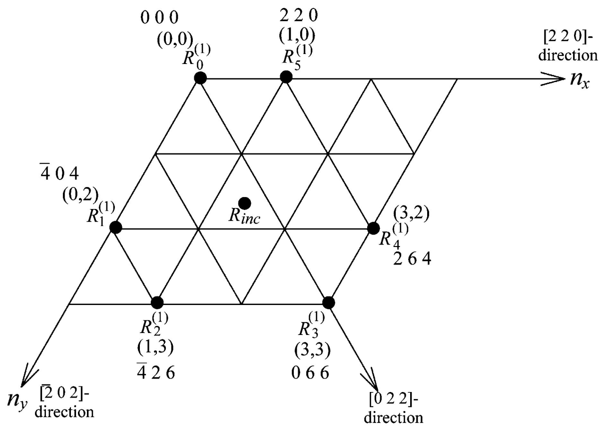

Fig. 3 This figure shows a top view of Fig. 2(*b*) [reproduction of Fig. 2 in Okitsu *et al*. (2012)[31)]].

Fig. 3は，**Fig. 2(*b*)**を上から見たところである。このケースでは，0 0 0 前方回折波と $\bar{4}$ 0 4, $\bar{4}$ 2 6, 0 6 6, 2 6 4, 2 2 0 反射 X 線が同時に強い（**Fig. 12**参照）。**Fig. 3** の n_x 方向と n_y 方向のなす角は120°である。**Fig. 2(*b*)**のベクトル $\overrightarrow{R_{inc}R_i^{(1)}}$（$i\in\{0,1,2,3,4,5\}$）は，0 0 0 前方回折波と $\bar{4}$ 0 4, $\bar{4}$ 2 6, 0 6 6, 2 6 4, 2 2 0 反射 X 線の波数ベクトルに平行である。4 次元の配列 $D_{even}(i,l,n_x,n_y)$［$i\in\{0,1,\cdots,n-1\}$, $l\in\{0,1\}$, $n_x\in\{\cdots,-2,-1,0,1,2,\cdots\}$, $n_y\in\{\cdots,-2,-1,0,1,2,\cdots\}$］を用意し，入射 X 線の偏光状態に応じて，$(i,l,n_x,n_y)=(0,0,0,0)$［入射 X 線の偏光状態が 0］または $(i,l,n_x,n_y)=(0,1,0,0)$［入射 X 線の偏光状態が 1］のとき，$D_{even}(i,l,n_x,n_y)=1$ を与え，それ以外の場合は $D_{even}(i,l,n_x,n_y)=0$ を，結晶表面の X 線入射点における境界条件として与える。結晶を十分に多くの層に分割して，上の層から下の層へと計算を実行してゆくが，表面から 1 層下の X 線振幅 $D_{odd}(j,m,n_x,n_y)$ は，**Fig. 2(*a*)** に示すように $D_{odd}(i,l,n_x-0,n_y-0)$, $D_{odd}(i,l,n_x-0,n_y-2)$, $D_{odd}(i,l,n_x-1,n_y-3)$, $D_{odd}(i,l,n_x-3,n_y-3)$, $D_{odd}(i,l,n_x-3,n_y-2)$, $D_{odd}(i,l,n_x-1,n_y-0)$ から式(44)を解くことによって求められる。**Fig. 2(*b*)**のような「ボルマン n 角錐（ピラミッド）」の外には波動場が存在しないので，計算はピラミッド内を末広がりにスキャンするように行う。$\chi_{h_i-h_j}$ の値は，XOP version2.3[38)]を用いて求めた。

一方，平面波入射条件に対応する常微分方程式(40)を解く場合の，式(44)に相当する差分方程式は，次のようになる。

$$
\begin{aligned}
&\frac{D_i''^{(l)}(z+\Delta z)-D_i''^{(l)}(z)}{\Delta z}\\
&=\mathrm{i}2\pi\left[\xi_i''+\frac{K}{\cos\Theta_i}\left(\beta'^{(0)}S_{i,0}^{(0)}+\beta'^{(1)}S_{i,0}^{(1)}\right)\right]\\
&\quad\times\frac{D_i''^{(l)}(z)+D_i''^{(l)}(z+\Delta z)}{2}.\\
&\quad-\frac{\mathrm{i}\pi K}{\cos\Theta_i}\sum_{j=0}^{n-1}\chi_{h_i-h_j}\\
&\quad\times\sum_{m=0}^{1}C_{i,j}^{(l,m)}\frac{D_j''^{(m)}(z)+D_j''^{(m)}(z+\Delta z)}{2}. \qquad (45)
\end{aligned}
$$

式(45)は，平面波 X 線入射，すべての反射がラウエケース限定ではあるが，式(44)の解を求めるときのように体積積分を行わないので，短時間で解を求めることができる。

3.2 *n* 波エバルト－ラウエ（E–L）理論の数値解法

式(12)の行列 $\mathbf{A}$ に式(13)を代入し，例えば LAPACK の ZGeEV を用いて k 番目（$k\in\{1,2,\cdots,2n\}$）の固有値 ξ_k と固有ベクトル $\mathscr{D}_k$ を求めることができる。

これにより，ブロッホ波を構成する波の波数ベクトルと q 番目の波（$q=2j+m+1$）の振幅比が求められるわけであるが，次に，$2n$ 個のブロッホ波をどのような配合比で合成すれば，境界条件を満足するかを考慮する必要がある。

列ベクトル $\mathscr{D}_k$ の q 番目の要素 $\mathscr{D}_{q,k}$（$=\mathscr{D}_{j,k}^{(m)}$）を q 行 k 列目の要素とする $2n\times 2n$ 行列 $\mathscr{D}$ を作り，次のような方程式を立てる。

$$\mathscr{D}\alpha^{(0)}=(1,0,0,\cdots,0,0)^T, \qquad (46a)$$

$$\mathscr{D}\alpha^{(1)}=(0,1,0,\cdots,0,0)^T. \qquad (46b)$$

上の式(46a)と(46b)は，$l(l\in\{0,1\})$ の偏光状態の X 線を入射したときの入射側結晶表面での境界条件である。これらの式を解くことにより，列ベクトル $\boldsymbol{\alpha}^{(l)}$ の k 番目の

要素 $\alpha_k^{(l)}$ が求められる。これは，k 番目のブロッホ波の配合比なので，l の偏光状態の入射 X 線に励起され，結晶裏面から出射する j 番目 m 偏光の X 線の振幅 $\mathcal{D}_j^{(l,m)}(exit)$ $[=\mathcal{D}_q^{(l)}(exit)]$ は，次の式で求められる。

$$\mathcal{D}_j^{(l,m)}(exit)=\mathcal{D}_q^{(l)}(exit)=\sum_{k=1}^{2n}\alpha_k^{(l)}\mathscr{D}_{j,k}^{(m)}\exp\left[-\mathrm{i}2\pi\xi_k T_z\right]. \quad (47)$$

ここで，T_z は結晶の厚さである。

式(13)の右辺第 2 項には，入射 X 線の，厳密な n 波条件からの角度のズレを表すパラメーター $\beta^{(0)}$ と $\beta^{(1)}$ が含まれるので，$|\mathcal{D}_j^{(l,m)}(exit)|^2(\mathbf{n}_z\cdot\mathbf{s}_j)/(\mathbf{n}_z\cdot\mathbf{s}_0)$ をとることにより，j 番目の波に対して，**Fig. 10**のような 2 次元の回折強度曲線が得られる。$(\mathbf{n}_z\cdot\mathbf{s}_j)/(\mathbf{n}_z\cdot\mathbf{s}_0)$ は，0 番目と j 番目のビーム断面積の違いを考慮するための補正項，**Fig. 10**では，$j=0$ である。

ラウエケースとブラッグケースが混在する場合については記述を省略するが，j 番目の波がブラッグケースになる場合，結晶の裏面での振幅の総和がゼロであるという $\sum_{k=1}^{2n}\alpha_k^{(l)}\mathscr{D}_{j,k}^{(m)}\exp(-\mathrm{i}2\pi\xi_k T_z)=0$ の境界条件を与えることになる。

筆者らの2019年の論文[39,40]では，n 波 E–L 理論の解を高速フーリエ変換することによりピンホールトポグラフ図形を得ている。この手法は，Kohn & Khikhlukha[41]および Kohn[42]によって考案されたものであり，彼らは対称 6 波ラウエケースについての計算機シミュレーションを報告している。筆者らはこの手法を，結晶が平行平板でない場合の非対称 8 波ラウエケース[39]，n 個の逆格子点が同一円周上にない場合の18波ケース[40]に拡張し，ピンホールトポグラフの X 線強度分布 $|D_j^{(m)}(x_{exit},y_{exit})|^2$ を求めた。ここで，X 線の出射側表面の位置ベクトル $\mathbf{r}_{exit}$ を，次のように表すものとする。

$$\mathbf{r}_{exit}=x_{exit}\mathbf{e}_x+y_{exit}\mathbf{e}_y+T_z\mathbf{n}_z. \quad (48)$$

また，**Fig. 1** より，

$$\overrightarrow{\mathrm{P}_1''\mathrm{La}_0}=\Delta k_x\mathbf{e}_x+\Delta k_y\mathbf{e}_y. \quad (49)$$

高速フーリエ変換により求めるべき振幅 $D_j^{(m)}(x_{exit},y_{exit})$ が $\exp(-\mathrm{i}2\pi\overrightarrow{\mathrm{La}_0\mathrm{H}_j}\cdot\mathbf{r})\mathbf{e}_j^{(m)}$ の波を変調し，かつ振幅 $\mathcal{D}_j^{(m)}(\Delta\mathbf{k})$ のコヒーレントな重ね合わせであることを考慮すると，次のように計算できる。

$$D_j^{(m)}(x_{exit},y_{exit})\exp(-\mathrm{i}2\pi\overrightarrow{\mathrm{La}_0\mathrm{H}_j}\cdot\mathbf{r}_{exit})=\int_{\Delta\mathbf{k}}^{D.S.}\mathcal{D}_j^{(m)}(\Delta\mathbf{k})\exp\left[-\mathrm{i}2\pi(\overrightarrow{\mathrm{P}_1'\mathrm{P}_1''}+\overrightarrow{\mathrm{P}_1''\mathrm{La}_0})\cdot\mathbf{r}_{exit}\right]\times\exp(-\mathrm{i}2\pi\overrightarrow{\mathrm{La}_0\mathrm{H}_j}\cdot\mathbf{r}_{exit})\mathrm{d}S. \quad (50)$$

ここで，$\mathcal{D}_j'^{(m)}(\Delta k_x,\Delta k_y)$ を次のようにおく。

$$\mathcal{D}_j'^{(m)}(\Delta k_x,\Delta k_y)=\sum_{k=1}^{2n}\alpha_k^{(l)}\mathscr{D}_{j,k}^{(m)}(\Delta\mathbf{k})\exp(-\mathrm{i}2\pi\xi_k'''T_z), \quad (51)$$
$$\text{where, } \overrightarrow{\mathrm{P}_{1,k}'\mathrm{P}_1''}=\xi_k'''\mathbf{n}_z.$$

式(51)のサンメーション $\sum_{k=1}^{2n}$ は，式(50)右辺の積分の中に含ませていたものを，展開したものである。式(51)を式(50)に代入して，式(48)と式(49)を考慮すると，

$$D_j^{(m)}(x_{exit},y_{exit})=\int_{\Delta\mathbf{k}}^{D.S.}\sum_{k=1}^{2n}\alpha_k^{(l)}\mathscr{D}_{j,k}^{(m)}(\Delta\mathbf{k})\exp(-\mathrm{i}2\pi\xi_k'''T_z)\times\exp(-\mathrm{i}2\pi\overrightarrow{\mathrm{P}_1''\mathrm{La}_0}\cdot\mathbf{r}_{exit})\mathrm{d}S$$
$$=\int_{\Delta k_x}\int_{\Delta k_y}\mathcal{D}_j'^{(m)}(\Delta k_x,\Delta k_y)\times\exp[-\mathrm{i}2\pi(\Delta k_x x_{exit}+\Delta k_y y_{exit})]\mathrm{d}\Delta k_y\mathrm{d}\Delta k_x. \quad (52)$$

上の式(52)は，標準的な 2 次元フーリエ変換である。すなわち，ピンホールトポグラフの X 線振幅 $D_j^{(m)}(x_{exit},y_{exit})$ を得るべく高速フーリエ変換にかけるのは，式(51)で定義される $\mathcal{D}_j'^{(m)}(\Delta k_x,\Delta k_y)$ である。

4. 実験

4.1 X 線移相子システム

4 波，5 波，6 波，8 波ケースのピンホールトポグラフの実験は，SPring-8 BL09XU のビームラインにおいて，水冷式のダイヤモンドモノクロメーターで，18.245 keV に単色化された X 線を用いて行われた。結晶に入射する X 線は「回転型四象限移相子システム」[29,31]で偏光状態をコントロールした。この偏光制御システム開発には，前段階があった。軸収差を補償する「二象限 X 線移相子システム」[43]，軸収差と色収差の両方を補償する「四象限 X 線移相子システム」である[44,45]。これらは，筆者が考案，設計し，手作りで製作した。評価実験は，上エ地とともに行い，良好な結果を得た。さらに発展させ，入射 X 線の光軸周りに回転させることにより任意の偏光状態を生成可能にしたのが，**Fig. 4**，**5** に示すシステムである。

透過型 X 線移相子[46–53]は，それ以前に検討された反射型 X 線移相子[54–58]と比較して一様な偏光状態の X 線を得る手段として画期的なものであった。それでもなお，入射 X 線の角度発散と波長広がりにより偏光状態に不均一（収差）が残る，という問題があった。透過型 X 線移相子を複数の象限への反射を与えるように重ねて用いることにより収差が補償され，より均一な偏光状態が得られる。また移相子結晶の実効厚を稼げるため，高エネルギー領域で

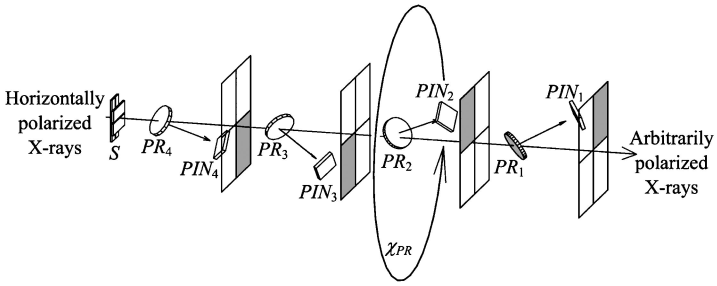

Fig. 4 Schematic drawing of the 'rotating four-quadrant phase retarder system' [reproduction of Fig. 3 in Okitsu *et al.* (2006)[29)]].

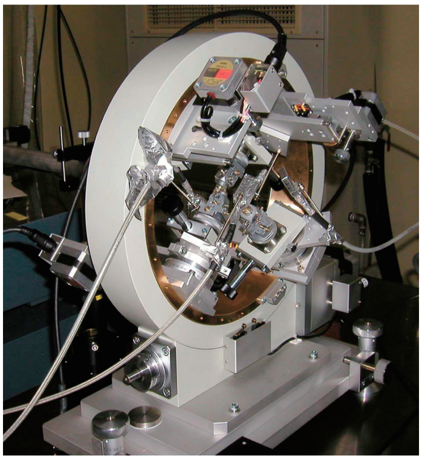

Fig. 5 (Color online) Photograph of the 'rotating four-quadrant phase retarder system' [reproduction of Fig. 3(*b*) in Okitsu *et al.* (2012)[31)]].

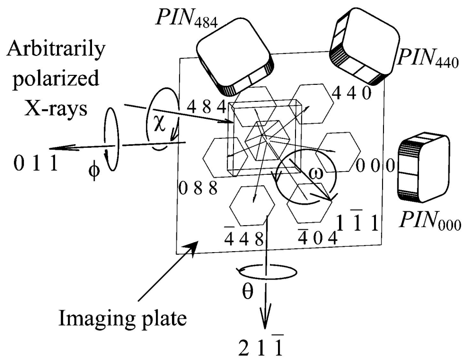

Fig. 6 A schematic drawing of the goniometer on which the sample crystal was mount (reproduction of Fig. 7 in Okitsu *et al.* (2006)[29)]).

の偏光コントロールに特に有利となる。

Fig. 4 は，この移相子システムの模式図，**Fig. 5** は，写真である。[1 0 0] 方位の 4 枚のダイヤモンド結晶 PR_n ($n \in \{1, 2, 3, 4\}$) で構成されており，厚さはそれぞれ，1.545, 2.198, 1.565, 2.633 mm である。非対称ラウエケース，1 1 1 反射条件の近傍で用いた。偏光コントロールの詳細については，筆者らの2006年の論文[29)]に記述してある。

$n \in \{3, 12, 18\}$ の n 波ケースの実験においては，移相子システムを使わず，18.245 keV ($n=3$)，22.0 keV ($n \in \{12, 18\}$) に単色化された水平偏光の X 線を，そのまま結晶に入射した。

4.2 サンプルとして用いた結晶と方位調整

Fig. 6 は，筆者らの2006年の論文[29)]の **Fig. 7** から転載したものである。$n \in \{3, 4, 5, 6, 8, 12, 18\}$ の n 波ケースに対して，[1 1̄ 1] 方位，高純度高抵抗の FZ シリコン結晶を用いた。結晶の厚さは，12波，18波ケースでは10.0 mm，その他のケースでは9.6 mm であった。χ, ϕ, ω, θ の 4 軸ゴニオメーターにマウントされ，これらの軸の方位は **Fig. 6** に示したとおりである。0 0 0 前方回折波とふたつの

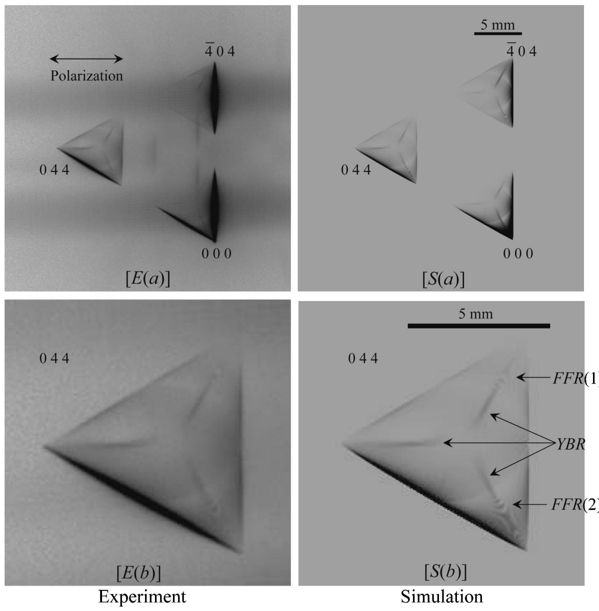

Fig. 7 [$E(a)$] and [$S(a)$] are experimentally obtained and computer-simulated three-beam X-ray pinhole topographs with an incidence of horizontal-linearly polarized X-rays whose photon energy was 18.245 keV. [$E(b)$] and [$S(b)$] are 0 4 4 reflected X-ray images enlarged from [$E(a)$] and [$S(a)$], respectively [reproduction of Fig. 5 in Okitsu *et al.* (2012)[31)]].

反射X線を，*PIN* フォトダイオードでモニターし，それらが同時に最強になるように，ゴニオメーターの回転軸を調整した。入射X線の下流側から，透過X線の光路と一致するようにレーザービームをセットし，結晶のX線入射位置に鏡を置き，X線の反射方向と完全に同じ方向にレーザーを反射するよう，鏡の角度をゴニオメーターで調整した。鏡を載せたゴニオメーターの回転角は予め計算しておくが，この計算無しで15×15 mm程度のダイオード受光面に反射X線を捉えることは不可能である。

ビームサイズは，25×25 μm のサイズに絞り，結晶後方に，結晶の出射側表面と平行になるようにイメージングプレートを置き，n 個の前方回折および反射X線図形を同時に撮影した。

5. 実験と計算機シミュレーションの結果

5.1　3波ケース

Fig. 7［$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{a})$］，**7**［$\boldsymbol{S}(\boldsymbol{a})$］は，0 0 0前方回折波，0 4 4と $\bar{4}$ 0 4反射波のそれぞれ，実験と計算によるピンホールトポグラフ図形である[31]。**Fig. 7**［$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{b})$］，**7**［$\boldsymbol{S}(\boldsymbol{b})$］は，0 4 4反射波を，それぞれ，**Fig. 7**［$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{a})$］，**7**［$\boldsymbol{S}(\boldsymbol{a})$］から拡大して表示したものである。**Fig. 7**［$\boldsymbol{S}(\boldsymbol{b})$］に矢印で示した細かいフリンジ［Fine Fringe Region（*FFR*(1)）］と（*FFR*(2)），Y字型のパターン［'Y-shaped' Bright Region（YBR）］が，**Fig. 7**［$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{b})$］にも見られ，シミュレーションと実験はよく一致している。

5.2　4波ケース

Fig. 8［$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{x})$］，**8**［$\boldsymbol{S}(\boldsymbol{x})$］（$x \in \{a, b, c\}$）は，実験および計算で得られた0 0 0前方回折波，$\bar{6}\,\bar{2}\,4$, $\bar{6}\,2\,8$, 0 6 6反射波のトポグラフ図形である[31]。(*a*)，(*b*)，(*c*)は，移相子システムによりコントロールされた入射X線の偏光状態が異なっており，下流から見て，水平から＋45°傾いた直線偏光，－45°傾いた直線偏光，右ネジ円偏光である。

Fig. 9［$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{x})$］，**9**［$\boldsymbol{S}(\boldsymbol{x})$］（$x \in \{a, b, c\}$）は，それぞれ**Fig. 8**［$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{x})$］，**8**［$\boldsymbol{S}(\boldsymbol{x})$］の $\bar{6}\,2\,8$ 反射波を拡大したものである。細かいフリンジ［Fine Fringe Region（*FFR*(1)）］は，**Fig. 9**［$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{a})$］，**9**［$\boldsymbol{S}(\boldsymbol{a})$］のいずれにも観察される。細かいフリンジ［Fine Fringe Region（*FFR*(2)）］は，**Fig. 9**［$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{x})$］，**Fig. 9**［$\boldsymbol{S}(\boldsymbol{x})$］（$x \in \{a, b, c\}$）のいずれにも見られる。ナイフエッジのような鋭い線［Knife Edge Line（*KEL*）］はすべての図に見られるが，**Fig. 9**［$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{a})$］，**9**［$\boldsymbol{S}(\boldsymbol{a})$］においてもっとも濃く，**Fig. 9**［$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{b})$］，**9**［$\boldsymbol{S}(\boldsymbol{b})$］においてもっとも薄く，**Fig. 9**［$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{c})$］，**9**［$\boldsymbol{S}(\boldsymbol{c})$］においては，その中間である。魚の骨のような模様［Pattern like Fish Born（*PFB*）］，アーチ状のライン［Arched Line（*AL*）］，明るい領域［Bright Region（*BR*）］は，**Fig. 9**［$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{a})$］，**9**［$\boldsymbol{S}(\boldsymbol{a})$］には観察されず，その他の図形では観察される。要は，計算機シミュレーションと実験によるトポグラフは，入射X線の偏光状態が同じのとき非常によく一致し，偏光状態に依存して大きく変化することがわかる。

(*a*)，(*b*)，(*c*)に対応する入射X線は，縦偏光と横偏光の振幅の絶対値の比率は変わらないが，位相差に違いがある。この位相差が，(*a*)，(*b*)，(*c*)のトポグラフ図形に大きな差異をもたらしている。

Fig. 10(***a***)，**10**(***b***)，**10**(***c***)は，ビーム下流方向から見て，それぞれの図の左上に示したように，水平からの傾きが，＋45°直線偏光，－45°直線偏光，右ネジ円偏光の入射X線を仮定して，E–L理論により計算した前方回折波の強度曲線である。$\Delta\omega$ は，［$\bar{2}\,\bar{1}\,1$］軸周りの，$\Delta\phi$ は，［0 1 1］軸周りの，厳密な4波条件からのズレ角である。「$\bar{6}\,\bar{2}\,4$」，「$\bar{6}\,2\,8$」，「0 6 6」と記入した部分に，X線透過強度の盛り上がりが見られるが，これらは，それぞれの反射指数がブラッグ条件を満たしたことによる，ボルマン効果（異常透過）[59]によるものである。それぞれの盛り上がりが交差し，

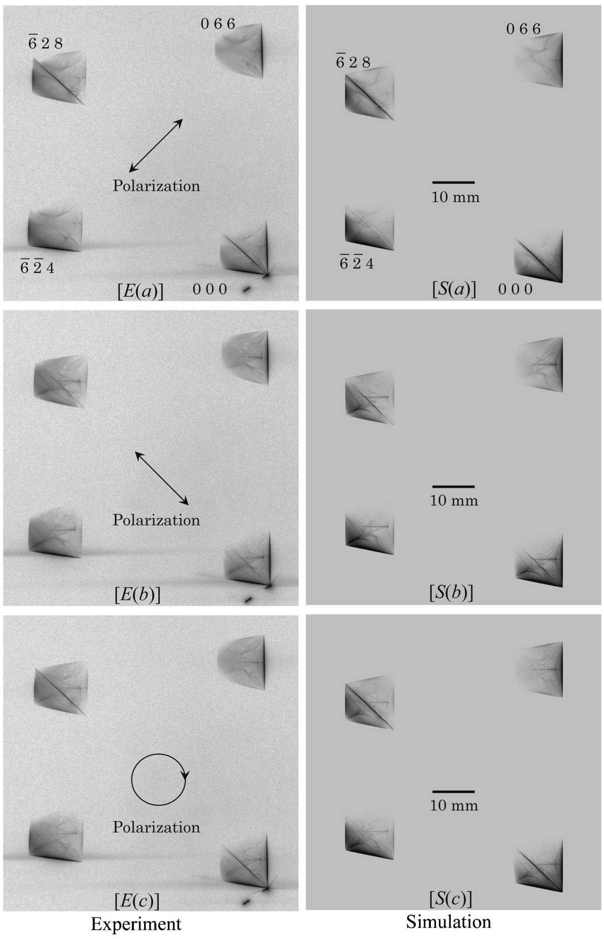

Fig. 8　［*E*(*x*)］and［*S*(*x*)］($x \in \{a, b, c\}$) are experimentally obtained and computer-simulated four-beam X-ray pinhole topographs with an incidence of ＋45°-inclined-linearly, －45°-inclined-linearly and right-screwed-circularly polarized X-rays whose photon energy was 18.245 keV［reproduction of Fig. 6 in Okitsu *et al*. (2012)[31]］.

4 波条件を満たしたところでは，「Super Borrmann」と記入した，スーパーボルマン効果[60]が見られる。「$\bar{6}$ 2 8」の盛り上がりは，**Fig. 10**(***a***)と比較して **Fig. 10**(***b***)では小さくなっており，**Fig. 10**(***c***)は，両者の中間くらいになっている。18.245 keV の X 線に対する $\bar{6}$ 2 8 反射のブラッグ角は，およそ39.64°であり，π 偏光に対する偏光因子を計算すると，0.186程度の小さな値となる。**Fig. 10**(***b***)の－45°直線偏光は，$\bar{6}$ 2 8 反射に対してはほぼ π 偏光となり，「$\bar{6}$ 2 8」の盛り上がりが小さい理由が説明できる。また，**Fig. 9**［***S***(***a***)］，**9**［***S***(***b***)］に記入した「*KEL*」の X 線強度が，入射 X 線の偏光状態に依存する理由も同様である。

5.3　5 波ケース

筆者らの2006年の論文[29] **Fig. 1** に示したように，立方晶の場合，5 個の逆格子点がひとつの円周上に存在する場合がある。

Fig. 11［***E***(***a***)］，**11**［***S***(***a***)］は，実験と計算機シミュレーションによる，5 波ピンホールトポグラフである[31]。入射 X 線の偏光状態は，移相子システムで横偏光を縦偏光に変換した。**Fig. 11**［***E***(***b***)］，**11**［***S***(***b***)］は，**Fig. 11**［***E***(***a***)］，**11**［***S***(***a***)］の $\bar{5}$ 5 5 反射波のイメージを拡大したものである[31]。ナイフエッジのような鋭い線［Knife Edge Line (*KEL*(1)と *KEL*(2))］，竪琴のようなパターン［Harp-Shaped Patten (*HpSP*)］が実験と計算機シミュレーションの両方に見られる。

Fig. 11［***E***(***b***)］，**11**［***S***(***b***)］を見ると，*KEL*(1)と *KEL*(2)の方向は，$\bar{5}$ 5 5 反射波と 0 0 0 前方回折波のトポグラフ像を結ぶ方向，および $\bar{5}$ 5 5 反射波と 3 3 3 反射波のトポグラフ像を結ぶ方向に平行である。このことは，結晶中で $\bar{5}$ 5 5 反射波と 0 0 0 前方回折波の間，および $\bar{5}$ 5 5 反射波と 3 3 3 反射波の間に，エネルギーのやりとりがあることをうかがわせる。同様な鋭い線［Knife Edge Line (*KEL*)］は，3, 4, 6, 8 波ケースのピンホールトポグラフ

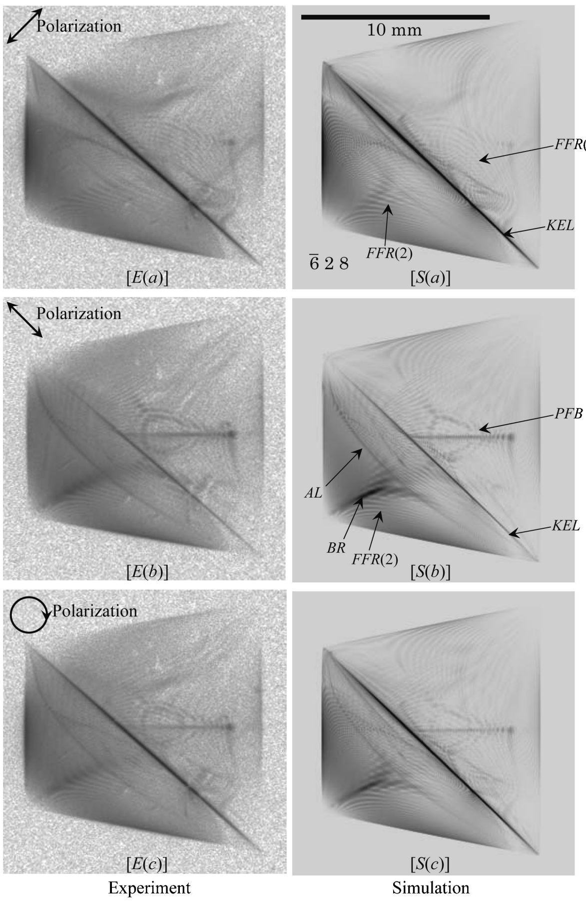

Fig. 9　［$E(x)$］and［$S(x)$］($x \in \{a, b, c\}$) are enlargements of $\bar{6}$ 2 8 reflected X-ray images in Fig. 8［$E(x)$］and［$S(x)$］［reproduction of Fig. 7 in Okitsu *et al.* (2012)[31]］.

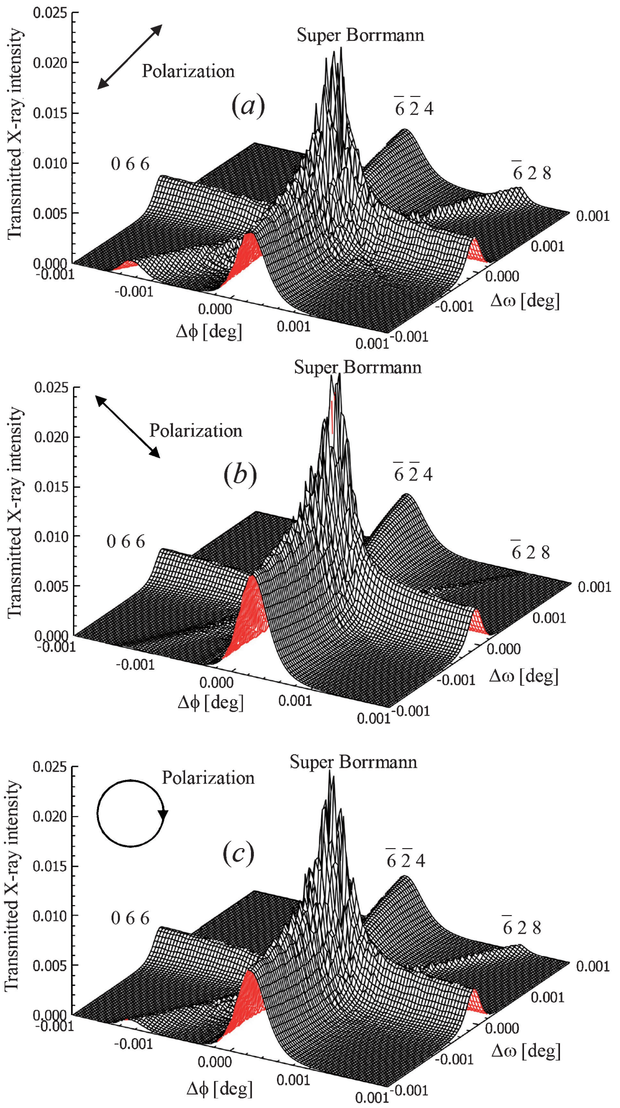

Fig. 10　(Color online) Transmittance of X-rays around the condition that $\bar{6}\,\bar{2}$ 4, $\bar{6}$ 2 8 and 0 6 6 Laue reflected X-rays are simultaneously strong. $\Delta\omega$ and $\Delta\phi$ are angular deviation around [$\bar{2}\,\bar{1}$ 1] and [0 1 1] axes from the exact four-beam condition.

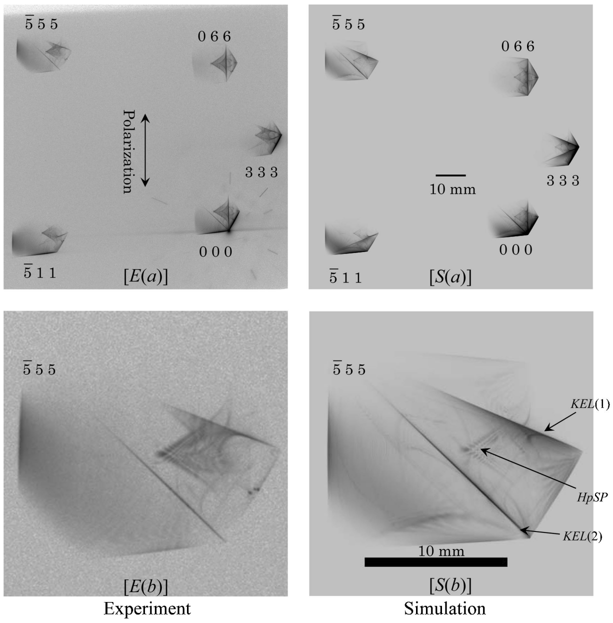

Fig. 11 [$E(a)$] and [$S(a)$] are experimentally obtained and computer-simulated five-beam X-ray pinhole topographs with an incidence of vertical-linearly polarized X-rays whose photon energy was 18.245 keV. [$E(b)$] and [$S(b)$] are $\bar{5}$ 5 5 reflected X-ray images enlarged from [$E(a)$] and [$S(a)$] [reproduction of Fig. 8 in Okitsu *et al.* (2012)[31)]].

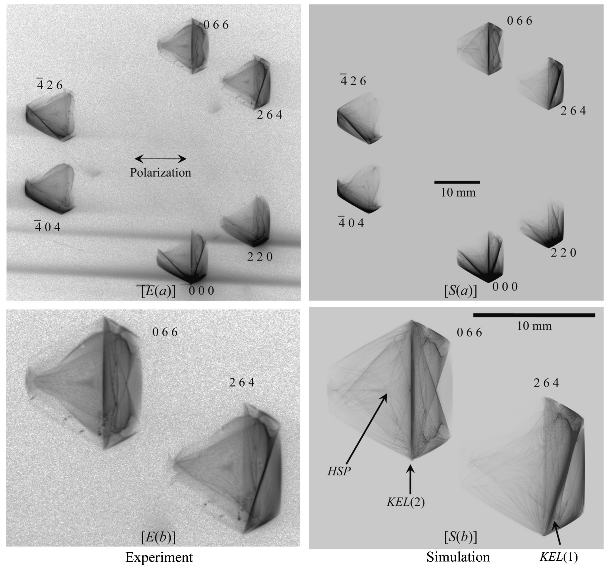

Fig. 12 [$E(a)$] and [$S(a)$] are experimentally obtained and computer-simulated six-beam X-ray pinhole topographs with an incidence of horizontal-linearly polarized X-rays with a photon energy of 18.245 keV. [$E(b)$] and [$S(b)$] are 0 6 6 and 2 6 4 reflected X-ray images enlarged from [$E(a)$] and [$S(a)$] [reproduction of Fig. 9 in Okitsu *et al.* (2012)[31)]].

においても見られる。

5.4　6 波ケース

筆者らが，2003年[28)]，2006年[29)]，2011年[30)]に報告した 6 波ケースにおいては，トポグラフ図形は正 6 角形であったが，この節で記述する 6 波ケースは，トポグラフ図形が正 6 角形ではない。

Fig. 12は，水平偏光入射による実験と，これを仮定して行った計算機シミュレーションの結果である[31)]。**Fig. 12** [$\boldsymbol{E(a)}$]，**12** [$\boldsymbol{S(a)}$] の 0 6 6 と 2 6 4 反射波を拡大したのが，**Fig. 12** [$\boldsymbol{E(b)}$]，**12** [$\boldsymbol{S(b)}$] である。ナイフエッジのような線 [Knife Edge Line（*KEL*(1)），（*KEL*(2)）] およびハート形のパターン [Hart-Shaped Pattern（*HSP*）] が，実験と計算機シミュレーションの両方に見られる。

トポグラフ図形が正 6 角形の 6 波ケース[28–30)]の場合には，円錐状のエネルギーフローがあることを示唆するリング状のパターンが見られたが，**Fig. 12**のケースでは，これは観察されなかった。

5.5　8 波ケース

Fig. 13は，8 波ピンホールトポグラフで，各々の図形の反射指数は，**Fig. 13** [$\boldsymbol{S_h}$**(T–T)**] に示したとおりである[31,39)]。

Fig. 13 [$\boldsymbol{E_x}$]（$x \in \{h, v\}$）は，横偏光（$x = h$）と縦偏光（$x = v$）の X 線を入射して得られた実験による 8 波ピンホールトポグラフである[31,39)]。横偏光は，移相子システムを外したわけではなく，奇数象限と偶数象限への反射を与える移相子がもたらす位相シフト量の符号を，逆転させることにより得られている。

Fig. 13 [$\boldsymbol{S_x}$**(T–T)**]，**13** [$\boldsymbol{S_x}$**(E–L)**] は，横偏光（$x = h$）X 線と，縦偏光（$x = v$）X 線の入射を仮定したときの T–T 方程式を解くか（T–T simulation），E–L 理論の解を高速フーリエ変換して得られた（E–L & FFT simulation）計算機シミュレーションによるトポグラフ図形である。実験を行った際，また計算機シミュレーションで仮定した，結晶の形状と X 線ビームパスの関係は，**Fig. 15(*a*)**の通りである。E–L & FFT シミュレーションは，**Fig. 15(*b*)**，**15(*c*)**の配置を仮定して行われ，それぞれ，α_2 と β_2 の部分を取り除き，**Fig. 16**の（α_1）と（β_1）の部分を別々に計算した。**Fig. 16(**α_1**)**，**16(**β_1**)**をつなぎ合わせたのが，**Fig. 14** [$\boldsymbol{S_v}$ **(E–L)**] である。

Fig. 15(*b*)と**Fig. 15(*c*)**を比較すると，入射側表面の法線ベクトルは，互いに直交する。**Fig. 15(*a*)**のような特殊な形状の結晶に対しての，E–L & FFT シミュレーションの手法を検討する際，気づいたことであるが，正確な *n* 波条件からの入射ズレ角によらず，X 線入射点で入射 X 線の位相がそろっていること，それと，出射側表面の方位とそこまでの距離だけが重要なのである。入射側表面の角度や形状に，高速フーリエ変換（FFT）により得られる解は依存しない。FFT を行うにあたっての詳細は，筆者らの2019年の論文[39)]に記述してある。

Fig. 14 [$\boldsymbol{S_x}$**(T–T)**]，**14** [$\boldsymbol{E_x}$]，**14** [$\boldsymbol{S_x}$**(E–L)**]（$x \in \{h, v\}$）

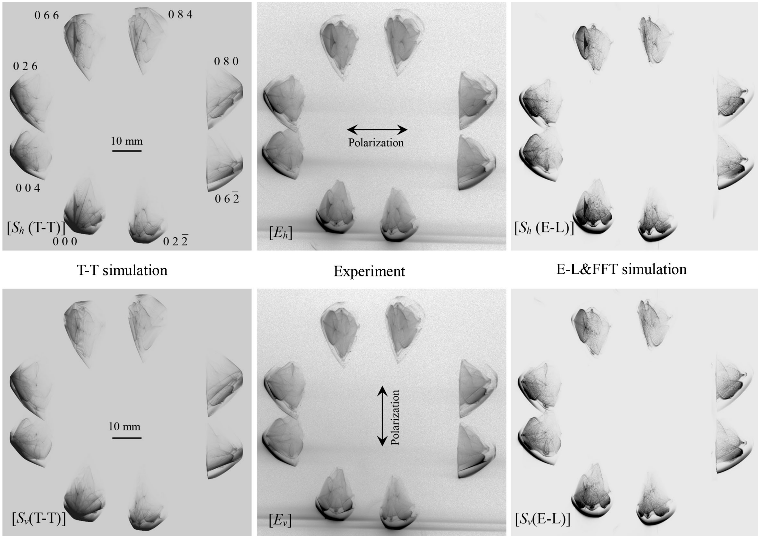

Fig. 13 [S_x(T–T)], [E_x], and [S_x(E–L)] ($x \in \{h, v\}$) are the T–T simulated, experimentally obtained and E-L&FFT simulated eight-beam pinhole topographs for horizontally ($x=h$) and vertically ($x=v$) polarized incident X-rays [reproduction of Fig. 5 in Okitsu *et al.* (2019)[39)]].

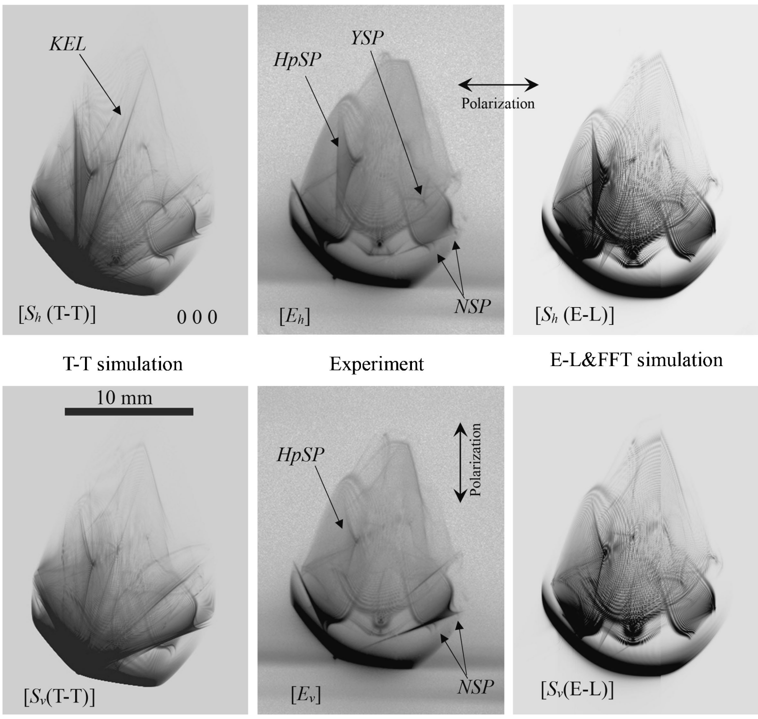

Fig. 14 Enlargements of the 0 0 0 forward-diffracted images in Fig. 13 [reproduction of Fig. 6 in Okitsu *et al.* (2019)[39)]].

は，**Fig. 13** [S_x(T–T)]，**13** [E_x]，**13** [S_x(E–L)] 0 0 0 前方回折波のトポグラフを拡大したものである。

実験による **Fig. 14** [E_h] には，竪琴のような模様 [Harp-Shaped Pattern (*HpSP*)]，Y 字形の模様 [‘Y-Shaped’ Pattern (*YSP*)]，爪のような模様 [Nail-Shaped Pattern (*NSP*)] が見られる。これらの模様は，**Fig. 14** [S_h(E–L)]，**14** [S_h(T–T)] にも見られる。

Fig. 14 [S_h(T–T)] に見られるナイフエッジのような線 [Knife Edge Line (*KEL*)] は，**Fig. 14** [E_h]，[S_h(E–L)] には，見られない。[S_h(T–T)] を計算するにあたっては，結晶の X 線入射側表面の 1 点でだけ，入射波がゼロでない振幅を持つという，デルタ関数の境界条件を与えている。これは，無限大の角度広がりを持った X 線が入射している状況を仮定していることを意味する。*KEL* は，非

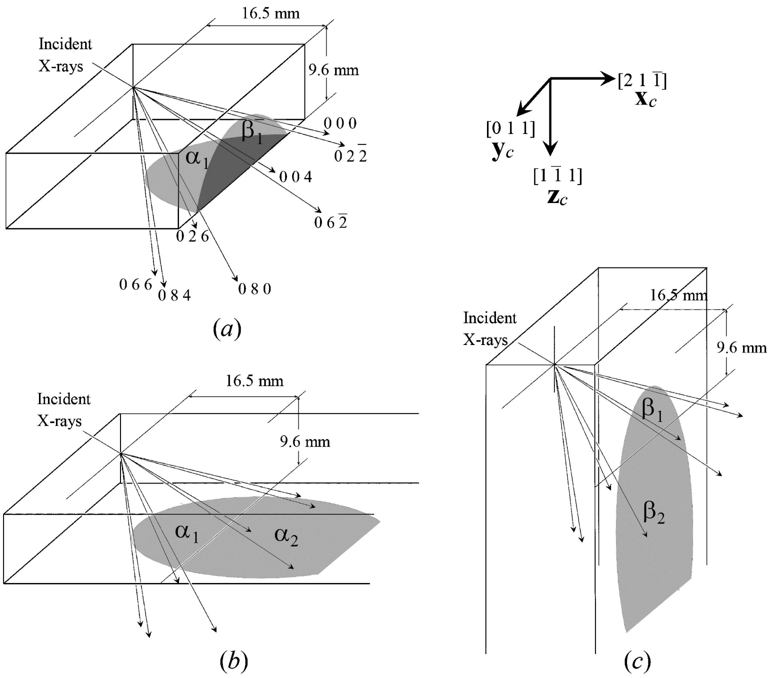

Fig. 15 Geometry of the eight-beam pinhole topography. $\mathbf{x}_c$, $\mathbf{y}_c$, and $\mathbf{z}_c$ drawn on the upper right corner are unit vectors in the directions $[2\,1\,\bar{1}]$, $[0\,1\,1]$, and $[1\,\bar{1}\,1]$, respectively [reproduction of Fig. 1 in Okitsu *et al.* (2019)[39)]].

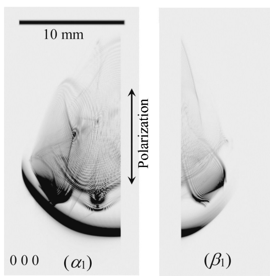

Fig. 16 (α_1) and (β_1) are computed separately under the assumption of vertically polarized incident X-rays. These figures have been computed by projecting intensities of the 0 0 0 forward-diffracted X-rays on the exit planes α_1 and β_1 in Fig. 15(*a*) on the imaging plate whose surface was normal to the [1 0 0] direction. X-ray intensities of α_2 and β_2 in Figs. 15(b) and 15(c) have been erased [reproduction of Fig. 8 in Okitsu *et al.* (2019)[39)]].

常に細い線であり，これを実空間で合成するには，逆空間において波の進行方向から大きくズレた波の成分が必要である。[S_h(T–T)] を計算する際には，これを満たす境界条件を与えている。[E_h] の像を得る実験では，入射 X 線の角度広がりは有限である。[S_h(E–L)] の計算では，高速フーリエ変換を有限な角度範囲で打ち切っている。このことが，[E_h] と [S_h(E–L)] に，*KEL* が見られない原因であると考えられる。

縦偏光で得られた **Fig. 14** [E_v] と，縦偏光入射を仮定して得られた **Fig. 14** [S_v(T–T)]，**14** [S_v(E–L)] においても *HpSP* が見られるが，模様は，**Fig. 14** [S_h(T–T)]，**14** [E_h]，**14** [S_h(E–L)] と比較して薄くなっている。

この 8 波ケースの場合，E–L & FFT シミュレーションに要した時間は24コアの並列演算で，およそ 8 分，T–T シミュレーションと比較して，100倍程度高速だった。しかし，このことから，E–L & FFT シミュレーションが T–T シミュレーションと比較して無条件に優れているとは，必ずしも言えない。E–L & FFT シミュレーションの計算時間は，結晶の厚さに依存せず，一定である。一方，T–T シミュレーションの所要時間は，*n* 角錐の「ボルマンピラミッド」の中を 3 次元スキャンするため，結晶の厚さの 3 乗に比例する。結晶の厚さが 1/10の1.0 mm 程度になれば，T–T シミュレーションは，E–L & FFT シミュレーションより10倍速くなる。

5.6　12波ケース

筆者は，立方晶の結晶においてひとつの円周上に存在しうる逆格子点の数は，最大で12だと認識していた。しかし，最近になって16個の逆格子点が円周上に存在しうることを見いだした。これについては，計算機シミュレーションを行ったが，実験を行っていないので，本稿では記述しない。

Fig. 17 [E(a)]，**17** [S(a)] は，実験と計算機シミュレーションによる，12波ケースのピンホールトポグラフである[31)]。22.0 keV に単色化された放射光を水平偏光のまま，結晶に入射している。反射指数は，図に示したとおりである。**Fig. 17** [E(b)]，**17** [S(b)] は，**Fig. 17** [E(a)]，**17** [S(a)] の 2 4 2 反射波の画像を拡大したものである。

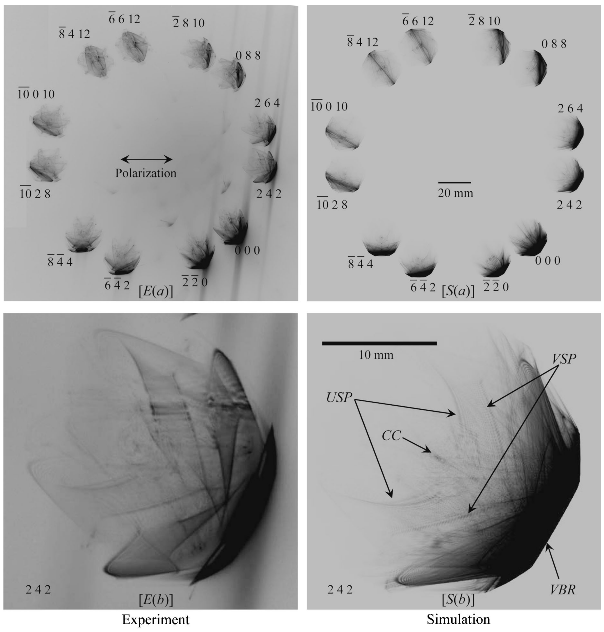

Fig. 17 [$E(a)$] and [$S(a)$] are experimentally obtained and computer-simulated twelve-beam X-ray pinhole topographs with an incidence of horizontal-linearly polarized X-rays whose photon energy was 22.0 keV. [$E(b)$] and [$S(b)$] are 2 4 2 reflected X-ray images enlarged from [$E(a)$] and [$S(a)$] [reproduction of Fig. 12 in Okitsu *et al.* (2012)[31)]].

計算機シミュレーションによる **Fig. 17** [$\boldsymbol{S(b)}$] に見られる，明るい領域 [Very Bright Region (*VBR*)]，V字形の模様 [‘V-Shaped’ Pattern (*VSP*)]，中心に見える円状の模様 [Central Circle (*CC*)]，U字形の模様 [‘U-Shaped’ Pattern (*USP*)] などの模様は，実験によるトポグラフ **Fig. 17** [$\boldsymbol{E(b)}$] においても認められる。

5.7 18波ケース

Fig. 18(*a*)，**18(*b*)**は，それぞれ，放射光実験と E-L & FFT シミュレーションにより得られた，18波ケースのピンホールトポグラフである[40)]。**Fig. 18(*a*)**は，22.0 keV の光子エネルギーで 6 波ケースを狙ったものであったが，外周にさらに12個のX線画像が得られた。これを検討したところ，**Fig. 18(*b*)**に指数を示したように，エバルト球のごく近傍に12個の逆格子点が存在していたことがわかった。逆格子点の並びを逆空間に作図したのが，**Fig. 19**である。この図からわかるように，$H_0, H_1, H_2, H_3, H_4, H_5$ と，H_j ($j \in \{6, 7, \cdots, 17\}$) から La_0 (ラウエ点) までの距離は，同じでない。このため，光子エネルギーのわずかな変化でシミュレーション画像は大きく変化する。21.98415 keV の光子エネルギーを仮定したとき，実験結果をよく再現した。

式(12)と式(16)で記述される n 波 E-L 理論は，§3.2に記述した手順で解を求めることができる。直接求められるのは，結晶を回転させたときの回折振幅であるが，8 波ケースと同様，結晶の入射側表面のX線がゼロでない振幅を持つという，実空間でのデルタ関数の振幅をシミュレートするには，正確な n 波条件からのズレ角に依存せ

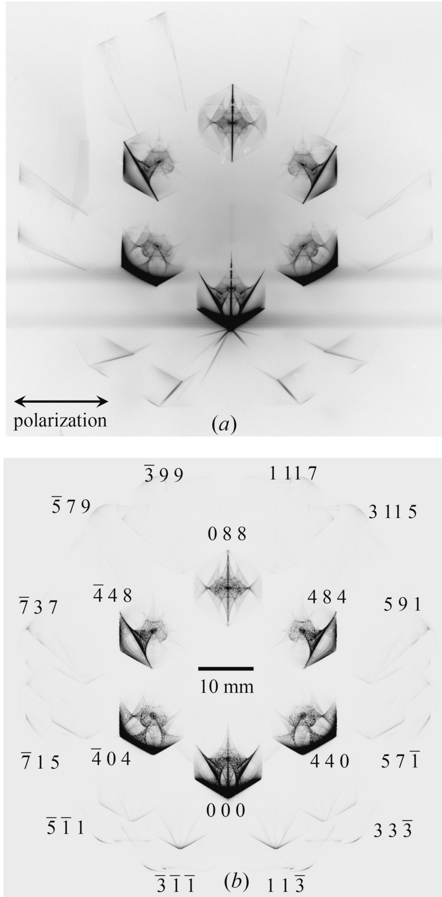

Fig. 18 (*a*) Experimentally obtained and (*b*) E-L&FFT simulated 18-beam pinhole topographs. (*b*) was obtained by the E-L&FFT simulation under an assumption of an incidence of X-rays with a photon energy $E = 21.98415$ keV ($\Delta E = E - E_0 = -0.25$ eV, where $E_0 = 21.98440$ keV) [reproduction of Fig. 3 in Okitsu *et al.* (2019)[40)]].

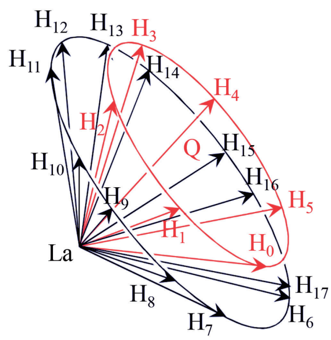

Fig. 19 (Color online) Six reciprocal lattice nodes are on a red (smaller) circle in reciprocal space. Outside of this circle, a black (larger) circle was observed on which twelve reciprocal lattice nodes were present. Q is the center of the red (smaller) circle [reproduction of Fig. 4 in Okitsu *et al.* (2019)[40)]].

ず，X 線入射点で波の位相がそろっている必要がある。

Fig. 19を参照すると明らかだが，18波ケースにおいては，**Fig. 2**(***b***)のような n 角錐の「ボルマンピラミッド」を定義できない。この故に18波ケースの計算を行うにあたって，n 波 T–T 理論が，全く無力かというとそうではない。式(40)は平面波入射のケースに使えるので，これを差分方程式に置き換えた式(45)を解くことにより，平面波入射の際の解を求めることができる。これを高速フーリエ変換することで，ピンホールトポグラフを計算することができる。いわば T–T & FFT シミュレーションが可能である。これについては，現在論文を準備中である。

6. 終わりに

Fig. 20は，シリコン 2 2 0 反射について計算したグリッチマップである。横軸は光子エネルギー（eV），縦軸（ψ）は，［1 1 0］軸周りに結晶を回転させた角度で，$\mathbf{K}_{000}\times\mathbf{K}_{220}$ が［0 0 1］方向に平行になるとき，$\psi=0$ である。$\mathbf{K}_{000}$ と $\mathbf{K}_{220}$ は，それぞれ，透過波と 2 2 0 反射波の波数ベクトルである。枠内の曲線はすべてグリッチで，これらは，2 2 0 以外の逆格子点が，エバルト球表面に同時に存在することで，2 波近似が破れることにより発生する。

モノクロメーターや，偏光子，検光子，移相子といった X 線結晶光学素子を設計するにあたって，グリッチの検討は非常に重要である。例えばシリコン 2 2 0 反射を用いて波長掃引を行う際，2 2 0 以外のブラッグ条件を同時に満たすエネルギーでは，2 波近似が破れてしまい，光学素子にグリッチ（不具合）が発生する。**Fig. 20**を見ると，グリッチの密度は，低エネルギー領域よりも高エネルギー領域で高いことがわかる。光子エネルギーを固定して，［2 2 0］軸周りにエバルト球を360°回転させると，逆空間にリンゴのような形の立体ができる。この立体の中に存在する逆格子点は，すべてグリッチの原因となる。グリッチ密度は，この立体の体積に比例するため，概ね光子エネルギーの 3 乗に比例することになる。

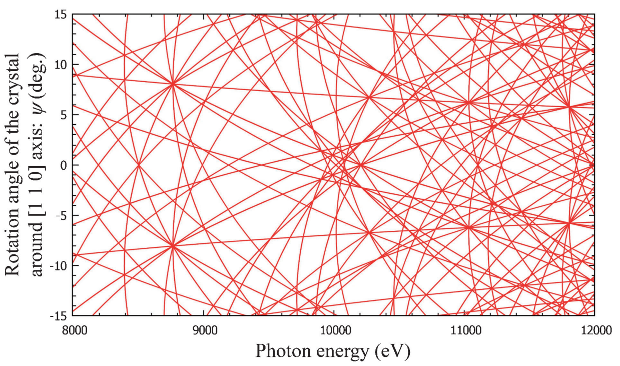

Fig. 20 (Color online) Glitch map (simultaneous reflection map) for silicon 2 2 0 reflection. ψ (the ordinate) is rotation angle (°) aroud [1 1 0] axis. The abscissa is X-ray photon energy (eV). ψ is *zero* when $\mathbf{K}_{000}\times\mathbf{K}_{220}$ is parallel to [0 0 1] direction. $\mathbf{K}_{000}$ and $\mathbf{K}_{220}$ are wave vectors of 0 0 0 transmitted and 2 2 0 reflected X-rays.

X 線光学素子のグリッチマップを参照して，エネルギースキャン範囲にグリッチが存在しないよう，ψ の値を予め調整しておくと，2 波近似が大きく破れることなく，エネルギー掃引を行うことができる。10 keV 程度以下のエネルギー領域では，これが行われている。しかし，高エネルギー領域では，エネルギーの 3 乗に比例して高密度となるグリッチを避けることは困難になり，20 keV 程度以上では，スペクトロスコピーがほとんど不可能になってしまう。第 3 世代の放射光のスペクトルは，高エネルギー側に伸びており，是非この領域を利用したいが，2 波の動力学理論のみが頼りでは，結晶光学素子の設計ができなくなってしまう。2 波近似が常に破れているような，高エネルギー領域での X 線結晶光学素子の設計には，式(18)の多波 E–L 理論ないしは，式(34)の多波 T–T 方程式を用いた計算と，ψ の回転機構を備えたゴニオメーターによる，高度な結晶制御が不可欠になるであろう。

2 波近似が破れ，多波回折が無視できなくなるもう一つのケースは，結晶の単位胞が大きく，逆格子点の密度そのものが大きくなる場合である。1990年代後半から，単結晶構造解析において，2 次元検出器の利用が一般化し，現在なお，その高度化が進んでいる。低分子の有機物結晶の場合でも数十個，タンパク質の結晶では，数百個から数千個の X 線回折スポットが，結晶を静止した場合でも，検出器に記録される。この状況を目の当たりにすると，2 波近似が破れていないとは考えにくい。低分子結晶構造解析においてさえ，このことは，レニンガー効果[19]としてよく知られている[61]。

タンパク質結晶の場合，結晶構造解析完了後に評価される R 因子が10%を下回ることは稀である。R 因子が10%まで下がっても，その定義式から考察すると，決定された分子構造から計算される X 線回折強度と，実測される回折強度との間には，加重平均をとって20%にも及ぶ食い違いがあることになる。

まだ仮説の段階ではあるが，タンパク質結晶に対して R 因子が下がらないのは，2 波近似の破れが原因だ，と筆者は考えている。同時に生じている多くの波を考慮する，式(18)ないしは式(34)を用いて X 線回折強度を計算することにより，実測強度との食い違いが大きく軽減されるのではないだろうか。だとすれば，2 波理論に代わり，多波理論により結晶構造解析を行う時代が，来るかも知れない。

加藤範夫の1995年の著書[10]第 5 章冒頭に，次のような記述がある。

「結晶回折の歴史を概観すると，動力学理論の骨格は，ラウエらの回折現象発見の直後，ダーウィン（C. G. Darwin; 1914）やエワルト（P. P. Ewald; 1917）によって確立されている。ラウエの回折条件(2.30)やブラッグの式(2.29)に代表される運動学理論が安心して用いられたの

は，動力学理論による基礎づけがあったからである」。

筆者は，2002年に逝去した加藤を深く尊敬していた。彼は，多波ケースの研究には全く手を付けなかった。1997年，筆者は，その理由について，彼に訊ねたことがある。「ラウエケースとブラッグケースが混在したとき，解が得られなくなってしまうから」[62]との答えだった。当時筆者は，すでにブラッグケースとラウエケースが混在する場合の3波ケースの計算機シミュレーション結果を得ていた。このことを告げると，加藤は「え？」という表情を見せた。

動力学理論の裏付けがあったから2波近似の運動学理論が安心して使えた，ということは，それが破れていることが明らかになれば，安心できないのではないだろうか。

1949年，リプスコムは[63]，3波ケースのX線回折強度プロファイルに結晶構造因子の位相情報が含まれていることを指摘した。n波E–L理論の数値解を初めて報告した，1974年のコレラの論文[24]では，これを引用し，研究の目的をタンパク質結晶の位相決定だとしている。以来46年が経過したが，これは実現していない。

タンパク質結晶の位相決定は，2波近似を前提として，重原子置換法や，アミノ酸のひとつであるメチオニンが持つイオウをセレンに置換して行う異常分散法[64]を用いて，成功を収めてきている。それでもなお，イオウの異常分散を利用する位相決定法が模索されるほど，ネイティブなタンパク質による位相決定は魅力的である。多波ケースを用いた結晶構造解析が一般化すれば，X線を照射中の結晶方位の検討から，エバルト球表面近傍に存在する逆格子点の指数付けのみで，位相が決定できるようになるかも知れない。

数百個もの反射X線が同時に強い状況で，3波ケースを実現するのは，ほぼ不可能である。しかし，**Fig. 19**に示したように，同一円周上にない18個の逆格子点がエバルト球表面，あるいはエバルト球表面近傍に存在する状況が，式(18)のn波E–L理論で記述され，これの数値解をフーリエ変換することにより，**Fig. 18(*b*)**が得られている。式(17)ないしは式(18)をフーリエ変換することにより，式(34)や式(38)で記述される，n波T–T方程式も導出されている。これらは，エバルト球表面近傍にある逆格子点をすべて考慮して，数値解を求めることができる。

現在，100個程度の波が同時に強い状況で，式(18)の多波E–L理論，および式(34)，式(35)の多波T–T方程式の数値解を求めて，X線反射強度を計算するプログラムを開発中である。重い計算になることが予想される。

計算機の能力は，演算速度，メモリー容量，ハードディスク容量のいずれにおいても，5年でおよそ一桁のペースで向上しつつある。さらに量子コンピューターが，そう遠くない将来，実用化されるだろう。こういった現況は，多波（n波）動力学理論の今後を考えるにあたり，非常に重要である。

E–L理論が波を逆空間で記述するのに対して，T–T理論は，実空間での振る舞いを記述する。これらの理論が等価であることを踏まえつつ，引き続きn波動力学理論の計算手法を検討してゆきたいと考えている。

謝辞

本研究は，文部科学省　科学技術振興調整費先導的研究等の推進「アクティブ・ナノ計測基盤技術の確立」プロジェクトの一環として，また，東京大学大学院工学系研究科総合研究機構　ナノ工学研究センターにおいて，ナノテクプラットホームプロジェクトの一環として行われた。

計算に用いたスーパーコンピューターは，東京大学物性研究所の‘sumire’, ‘kashiwa’および‘sekirei’，東京工業大学の‘TSUBAME 3.0’である。

実験は，SPring-8 BL09XUにおいて，高輝度光科学研究センター（JASRI）の承認（Proposal No. 2002A 0499–NMD3–np, 2003B 0594–NM–np, 2004A 0330–ND3c–np, linebreak 2004B 0575–ND3c–np）のもと行われた。

また予備実験は，物質構造科学研究所Photon Factory ARNE3Aにおいて，放射光共同利用実験審査委員会（PFPAC）の承認（Proposal No. 2003G 202, 2003G 203）のもと行われた。

実験は，高輝度光科学研究センターの今井康彦博士，依田芳卓博士，東京大学大学院新領域創成科学研究科の上ヱ地義徳博士（現 株式会社リガク）の協力を得て行われたことを明記し，感謝の意を表します。

本研究の意義を理解してくださり，励ましを頂いた，東京大学工学系研究科名誉教授，菊田惺志先生に深く感謝致します。

参考文献

1) C. G. Darwin: Philos. Mag. **27**, 315 (1914).
2) C. G. Darwin: Philos. Mag. **27**, 675 (1914).
3) P. P. Ewald: Ann. Phys. 4. Folge **54**, 519 (1917).
4) M. v. Laue: Ergeb. Exakten Naturwiss **10**, 133 (1931).
5) 三宅静雄：“X線の回折”(1969).
6) L. V. Azáro., R. Kaplow, N. Kato, R. J. Weiss, A. J. C. Wilson and R. A. Young: ‘‘X-Ray Diffraction’’ (1974).
7) 加藤範夫：“回折と散乱”(1978).
8) Z. G. Pinsker: ‘‘Dynamical Scattering of X-Rays in Crystals’’ (1978).
9) 高良和武，菊田惺志：“X線回折技術”(1979).
10) 加藤範夫：“X線回折と構造評価”(1995).
11) A. Authier: ‘‘Dynamical Theory of X-Ray Diffraction, Reprinted with Revisions 2004, 2005.’’ (2005).
12) 菊田惺志：“X線散乱と放射光科学基礎編”(2011).
13) S. Takagi: Acta Cryst. **15**, 1311 (1962).
14) S. Takagi: J. Phys. Soc. Jpn. **26**, 1239 (1969).
15) 高木佐知夫：日本結晶学会誌 **13**, 248 (1971).
16) D. Taupin: Bull. Soc. Fr. Minéral. Cristallogr. **87**, 469 (1964).
17) Y. Epelboin: Mater. Sci. Eng. **73**, 1 (1985).
18) Y. Epelboin: Prog. Cryst. Growth Charact. **14**, 465 (1987).
19) M. Renninger: Z. Phys. **106**, 141 (1937).

20) T. Joko and A. Fukuhara: J. Phys. Soc. Jpn. **22**, 597 (1967).
21) G. Hildebrandt: Phys. Stat. Sol. **24**, 245 (1967).
22) P. P. Ewald and Y. Héno: Acta Cryst. **A24**, 5 (1968).
23) Y. Héno and P. P. Ewald: Acta Cryst. **A24**, 16 (1968).
24) R. Colella: Acta Cryst. **A30**, 413 (1974).
25) G. Thorkildsen: Acta Cryst. **A43**, 361 (1987).
26) H. B. Larsen and G. Thorkildsen: Acta Cryst. **A54**, 129 (1998).
27) K. Okitsu: Acta Cryst. **A59**, 235 (2003).
28) K. Okitsu, Y. Imai, Y. Ueji and Y. Yoda: Acta Cryst. **A59**, 311 (2003).
29) K. Okitsu, Y. Yoda, Y. Imai, Y. Ueji, Y. Urano and X.-W. Zhang: Acta Cryst. **A62**, 237 (2006).
30) K. Okitsu, Y. Yoda, Y. Imai and Y. Ueji: Acta Cryst. **A67**, 550 (2011).
31) K. Okitsu, Y. Imai and Y. Yoda: "Recent Advances in Crystallography" (2012) p.67. http://dx.doi.org/10.5772/47846.
32) 沖津康平：X 線分析の進歩 **36**, 95 (2005).
33) S.-L. Chang: "X-Ray Multiple-Wave Diffraction, Theory and Application" (2004).
34) E. Weckert and K. Hümmer: Acta Cryst. **A53**, 108 (1997).
35) E. Weckert and K. Hümmer: Cryst. Res. Technol. **33**, 653 (1998).
36) R. Colella: Comments Cond. Mat. Phys. **17**, 175 (1995).
37) R. Colella: Comments Cond. Mat. Phys. **17**, 199 (1995).
38) M. S. del Rio and R. J. Dejus: Proc. SPIE **3448**, 340 (1998).
39) K. Okitsu, Y. Imai, Y. Yoda and Y. Ueji: Acta Cryst. **A75**, 474 (2019); https://doi.org/10.1107/S2053273319001499.
40) K. Okitsu, Y. Imai and Y. Yoda: Acta Cryst. **A75**, 482 (2019); https://doi.org/10.1107/S2053273319002936.
41) V. G. Kohn and D. R. Khikhlykha: Acta Cryst. **A72**, 349 (2016).
42) V. G. Kohn: Acta Cryst. **A73**, 30 (2017).
43) K. Okitsu, Y. Ueji, K. Sato and Y. Amemiya: J. Synchrotron Rad. **8**, 33 (2001).
44) K. Okitsu, Y. Ueji, K. Sato and Y. Amemiya: Acta Cryst. **A58**, 146 (2002).
45) 沖津康平，上エ地義徳，佐藤公法，雨宮慶幸：日本放射光学会誌 **16**, 236 (2003).
46) K. Hirano, K. Izumi, T. Ishikawa, S. Annaka and S. Kikuta: Jpn. J. Appl. Phys. **30**, L407 (1991).
47) T. Ishikawa, K. Hirano and S. Kikuta: J. Appl. Cryst. **24**, 982 (1991).
48) K. Hirano, T. Ishikawa, S. Koreeda, K. Fuchigami, K. Kanzaki and S. Kikuta: Jpn. J. Appl. Phys. **31**, L1209 (1992).
49) T. Ishikawa, K. Hirano, K. Kanzaki and S. Kikuta: Rev. Sci. Instrum. **63**, 1098 (1992).
50) K. Hirano, T. Ishikawa and S. Kikuta: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **336**, 343 (1993).
51) K. Hirano, T. Ishikawa and S. Kikuta: Rev. Sci. Instrum. **66**, 1604 (1995).
52) C. Giles, C. Malgrange, J. Goulon, F. de Bergevin, C. Vettier, E. Dartyge, A. Fontaine, C. Giorgetti and S. Pizzini: J. Appl. Cryst. **27**, 232 (1994).
53) C. Giles, C. Malgrange, J. Goulon, F. de Bergevin, C. Vettier, A. Fontaine, E. Dartyge and S. Pizzini: Nucl. Instr. Meth. A **349**, 622 (1994).
54) M. Hart: Philos. Mag. B **38**, 41 (1978).
55) S. Annaka, T. Suzuki and K. Onoue: Acta Cryst. **A36**, 151 (1980).
56) S. Annaka: J. Phys. Soc. Jpn. **51**, 1927 (1982).
57) J. A. Golovchenko, B. M. Kincaid, R. A. Lvesque, A. E. Meixner and D. R. Kaplan: Phys. Rev. Lett. **57**, 202 (1986).
58) D. M. Mills: Phys. Rev. B **36**, 6178 (1987).
59) G. Borrmann: Z. Phys. **127**, 297 (1950).
60) G. Borrmann and W. Hartwig: Z. Kryst. **121**, 401 (1965).
61) 大橋裕二："X 線結晶構造解析" (2005).
62) 加藤範夫：私信 (1997).
63) W. N. Lipscomb: Acta Cryst. **2**, 193 (1949).
64) W. A. Hendrickson, A. Pähler, J. L. Smith, Y. Satow, E. A. Merritt and R. P. Phizackerley: Proc. Natl. Acad. Sci. **86**, 2190 (1989).

著者紹介

沖津康平
東京大学工学系研究科総合研究機構 助手
E-mail: okitsu@soyak.t.u-tokyo.ac.jp

専門：X 線回折物理学，X 線光学，X 線単結晶構造解析

[略歴]
1984年，京都大学工学部金属加工学科卒業，1989年，富山大学理学部物理学科修士課程修了，1997年，総合研究大学院大学放射光科学専攻修了，博士（工学），1998年，東京大学工学部総合試験所助手，2007年，東京大学工学系研究科総合研究機構助手（現職）

X-ray *n*-beam dynamical diffraction theories, numerical method to solve them and experimental verification

Kouhei OKITSU Nano-Engineering Research Center, Institute of Engineering Innovation, Graduate School of Engineering, The University of Tokyo, 2–11–16 Yayoi, Bunkyo-ku, Tokyo 113–8656, Japan.

Abstract The behavior of X-rays when they are incident on a crystal can be described by the dynamical diffraction theories. Studies on them when the transmitted and one Bragg-reflected X-ray beams are strong (two-beam case) have a history of one hundred years. However, the population of researchers on X-ray multiple-beam (*n*-beam) reflection is small. The present author has extend the Takagi equation (T–T theory) such as to be applicable to *n*-beam cases and developed the numerical method to solve it. They have been verified by comparing the computer-simulations and experimental results with the synchrotron X-rays whose polarization state was controlled. The equivalence between the Ewald-Laue and T–T dynamical diffraction theories is also described. The theoretical, numerical and experimental studies on the *n*-beam diffraction of X-rays are explained. Further, a hypothesis concerning the too large values of *R* factors in protein crystal structure analysis, is also described