

## 円偏光X線ビームラインの建設とその応用実験

河田 洋

高エネルギー物理学研究所

### 1. はじめに

X線磁気散乱の分野は放射光の出現により大きく発展した分野の1つである<sup>1, 2)</sup>。その大きな発展の原動力は、放射光の強度であることは言うに及ばないが、それだけではなく放射光の波長可変性と優れた偏光特性もその理由の1つである。例えば並河ら<sup>3)</sup>によって初めて見出だされたニッケル単結晶における共鳴磁気散乱や、また G. Schützら<sup>4)</sup>によって実験的に初めて見出だされた円偏光X線を用いた磁気吸収スペクトロスコープはその波長可変性と偏光特性を利用して確立した分野であろう。それでは偏光特性を利用した磁気散乱は放射光の出現で初めて可能になったのかというと、そうではなく、1970年代に坂井ら<sup>5)</sup>によるパイオニア的な実験がある。彼らは<sup>57</sup>Coの $\gamma$ 線源を極低温まで冷却し、核磁性を整列させ、それから発生する円偏光 $\gamma$ 線(122KeV)を線源として磁気コンプトン散乱実験を行なっている。しかしそのシグナルのカウンtrateは低く、かつ極低温技術が必要であるためその実験は容易なものではなかった。しかしこの実験から得られる情報は基底状態の磁性電子における運動量空間の電子密度分布が得られ、弾性散乱である磁気 Bragg 散乱が実空間の電子密度分布を与えるのに対して相補的な情報を与える実験手法である。この報告で述べる円偏光ビームラインの第1の目的は、上述の磁気コンプトン散乱を容易に行え得る実験ステーションを整備することであった。

初めて磁気コンプトン散乱実験に放射光を利用したのは M.J. Cooperら<sup>6)</sup>である。彼らは軌道レベルから上下にはずれたX線が楕円偏光であることに注目し、ダルスベリーの超電導ウィグラービームラインでその実験を行なっている。一方軌道レベルの直線偏光のX線を結晶光学を用いて $\lambda/4$ 板を作製し、磁気コンプトン散乱を測定する試みが D. Mills<sup>7)</sup>によって行われている。しかしながら前者の方法はX線強度がさほど強くなくまた後者は波長可変性において難点がある。また磁気コンプトン散乱実験で必要となるX線のエネルギーは約60KeV程度で2.5GeVのPFリングでは期待し難いものである。

以上の様な難点を克服するには、高エネルギーの加速リングに円偏光(楕円偏光)X線用の挿入光源を導入し、ビームラインを建設するのが最も直接的な方法であるが、幸運にも時を同じくしてトリスタンの主リング(Main Ring)の前段加速リングであるAR(Accumuration Ring)に超高輝度ビームライン建設に対する予算が認められた。そこで山本・北村両氏により提案された楕円マルチポールウィグラー(E-MPW)<sup>8)</sup>を同挿入光源グループの努力とトリスタン加速器グループの協力のもとにARに設置し<sup>9)</sup>、同時に円偏光X線ビームラインの建設を行なった<sup>10)</sup>。第2章に上述のビームラインの概要、すなわち挿入光源、ビームライン、実験装置の順に述べ、第3章に代表的な実験例を報告し、第4章にまとめと今後の展望につい

て述べる。

## 2. ビームラインの概要

### 2・1 挿入光源<sup>8,9,11)</sup>

著者は挿入光源に関して門外漢であるので詳しくは前述の文献を参照願いたい。ただビームラインの性格を説明する上で、必要な部分に限って説明を行う。図1に挿入光源の概要を示す。このE-MPWは磁石列(NdFeB)が縦・横に位置し、その結果この挿入光源内での電子軌道は図に示す様に楕円状のらせん運動を行う。そしてこの運動が軌道面上で楕円偏光のX線を放射する。図2にこの挿入光源からの放射光の円偏光度及び輝度スペクトルを示す。この図はARが6.5GeV, 50mAで運転した時のものであり、いくつかのラインは異なる $K_x$ ,  $K_y$ パラメータによるものである。ここで $K_x$ ,  $K_y$ は挿入光源の放射を特徴づける重要なパラメータで、次式で示す様に挿入光源の横・縦方向の磁場,  $B_x$ ,  $B_y$ (T)と周期長 $\lambda_u$ (cm)に比例する量である。

$$K_{x\text{ or }y} = 0.934 \cdot B_{x\text{ or }y} \cdot \lambda_u \quad (1)$$

ウィグラーモードでは最大磁場1(T)に対応して $K_y$

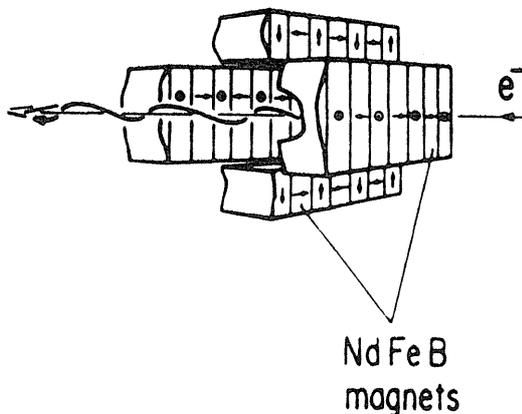


Fig.1 Schematic illustration of the E-MPW. Arrows on the individual magnets denote their magnetization directions. (After ref.(22))

=15とし,  $K_x=0, 0.5, 1, 1.5, 2$ の値に対するスペクトルが図2にまとめられている。 $K_x=0$ では一般のマルチポールウィグラーに対応し、輝度は最大となるが円偏光度は完全に0である。 $K_x$ の値が増加していくと、輝度は減少するが円偏光度は増大する。従って $K_x$ の値を0.5~1の間で使用すると60KeVのX線で円偏光度が60~70%, 強度はBending放射光の1桁上の放射光が得られる。また円偏光を使用せず、強度だけが必要な場合には $K_x=0$ (横磁場を0にする)にもっていけば、光軸の調整を全く必要とせず、同じ位置に放射光が導かれる。もう一つの特徴は $K_x, K_y \leq 2$ 程度のヘリカルアンジュレータとして運転した際、200eV~1.5KeVに渡って高輝度でかつほぼ完全円偏光の軟X線が得られる点である。

### 2・2 ビームライン

前述のE-MPWで発生する放射光は以下の3つのブランチ・ビームラインに導かれる。

- 1) ビームラインBL-NE1A1: 磁気コンプトン散乱及び高分解能コンプトン散乱実験を目的とした実験ステーションである。その仕様は、エネルギー範囲: 40~70KeV, 分光器のエネルギー分解能:  $\Delta E/E \leq 10^{-3}$ , フラックス:  $I \geq 10^{13}$  photons/sである。この仕様は高分解能コンプトン散乱実験を行う際、その運動量空間の分解能 $\Delta P$ が $\Delta P \leq 0.1$  atomic unitとなる様に定めた目標値である。この目標値は後で詳述する擬似2次元湾曲結晶分光器(Quasi-Doubly-Bent crystal monochromator)によってほぼ達成されている。
- 2) ビームラインBL-NE1A2: 磁気Bragg散乱, 磁気X線吸収スペクトルを目的としたビームラインで、6~100KeVまで単色X線を容易に利用できることを最終目的としている。現在6~30KeVまでのデジタル集光X線が2結晶分光器を用いて得られている。
- 3) ビームラインBL-NE1U: 200eV~1.5KeVの完全円偏光軟X線をグレーティング分光器を用

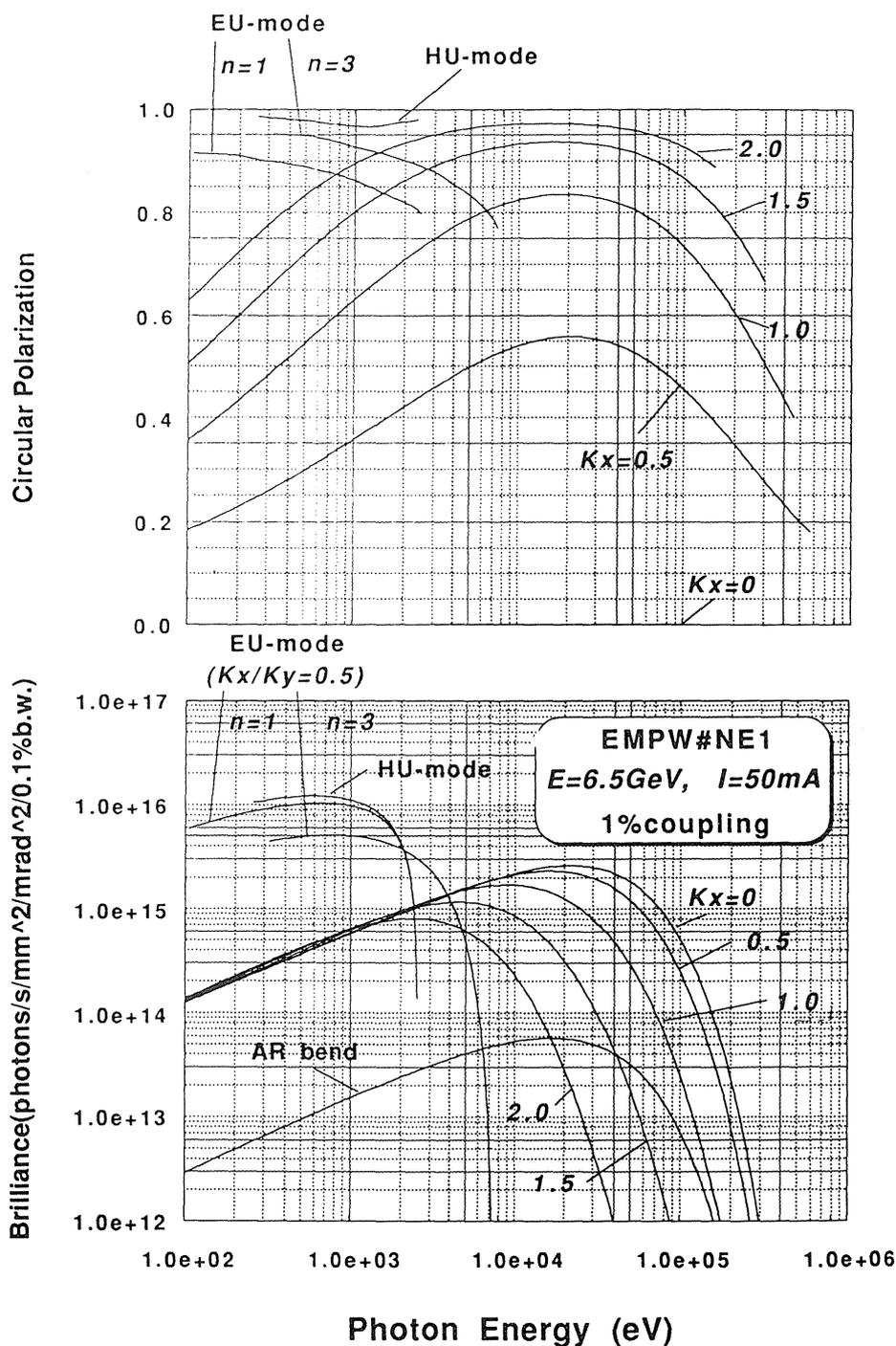


Fig.2 Spectra of the brilliance and the degree of circular polarization for the E-MPW at different machine parameters of  $k_x$  and  $k_y$ . (After ref.(11))

いて取り出し、そのX線を用いての磁気吸収スペクトル等の実験を目的としている。

図3にビームラインの平面図及び側面図を示す。ウィグラーモードでは放射パワーは4KWに達する(6.5GeV, 50wA)ため、ほとんどの光学素

子は水冷されている。基幹チャンネル群は水冷マスク1, 水冷アブゾーバー, メインビーム・シャッターから出きている。

アンジュレーターモードで軟X線を使用する際には、基幹チャンネル下流のVUVミラー1を挿入

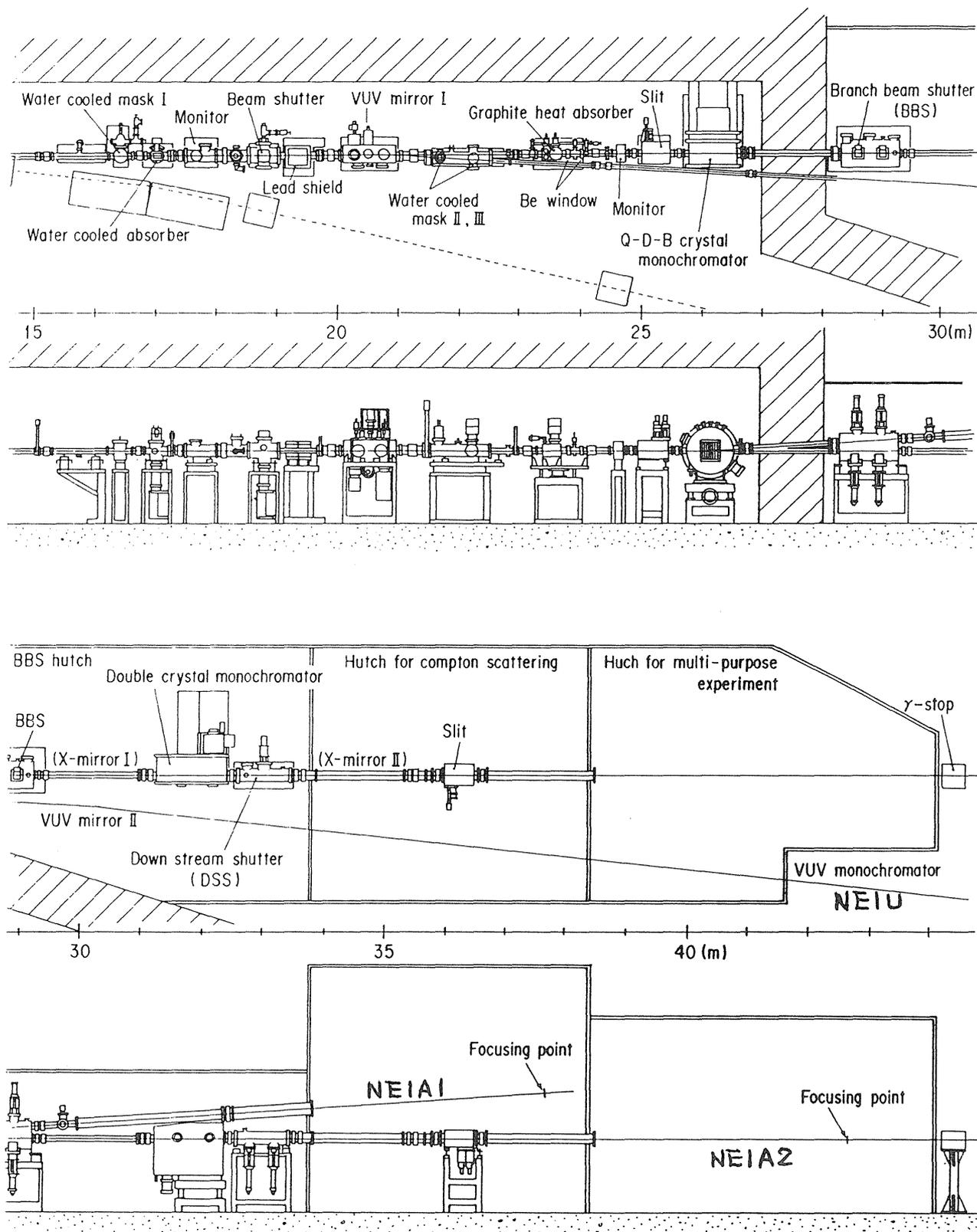


Fig.3 Top view and side view of the beamline. (After ref.(10) )

し、 $1.5^\circ$  の入射角で横方向に反射する。反射された軟X線は実験室内に導かれ、湾曲円筒ミラーによって再び反射集光され、VUVグレーティング分光器に導かれる。

ウィグラーモードで硬X線を使用する際には、VUVミラーを上下並進によりビームライン光軸上から取り除き、放射光は4枚の0.1mm厚の水冷グラファイト板を通り、2枚の0.3mm厚のBe板を経て超高真空から、一般X線ビームラインのターボポンプ真空に導かれる。このグラファイトとBe板の構成はPFのBL16とほぼ同じ形態をしており<sup>12)</sup>、放射光を切り欠くことなく通すためにリモートでその高さを0.1mmの精度で上下移動できる様になっている。この後、ビームポジションモニター、4象限スリットを通り、Q-D-B結晶分光器に導かれる。この分光器によって単色化されたX線は図3に示す様に上方に反射され、ブランチ・ビーム・シャッター(BBS)を経てコンプトン散乱実験ハッチ内で集光するように設計されている。

一方、BL-NE1A2を使用する際には、再び、上下並進により、Q-D-B結晶分光器はビームライン光軸から取り除かれ、放射光はBBSに導かれる。現在はまだ白色X線用ミラー(X-ミラーI)は設置されておらず、放射光は2結晶分光器ダウン・ストリーム・シャッター(DSS)、単色X線用ミラー(X-ミラーII)、4象限スリットを経て、実験ハッチ内に導かれる。すなわち、BL-NE1A2では横方向は2結晶分光器を用いてサジタル集光し、縦方向はX-ミラーIIを用いて集光する光学系である。

著者はX線ビームラインの担当であるので、これより先の記述はBL-NE1A1、A2の内要についてのみ行う。

## 2・3 X線分光器

### A) Q-D-B結晶分光器<sup>10), 13)</sup>

高分解能コンプトン散乱実験を行うには前にも

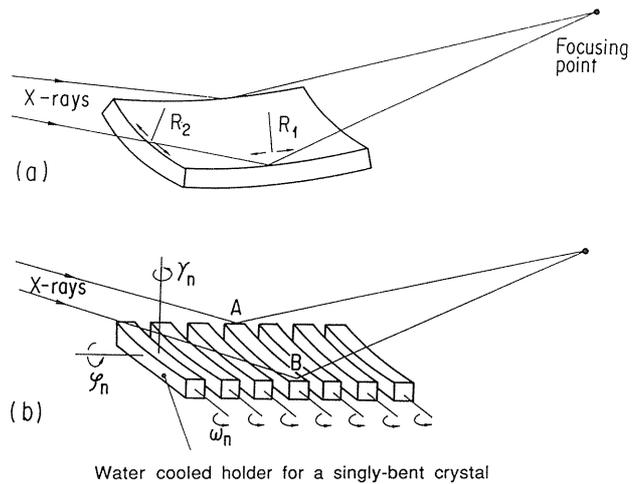


Fig.4 (a) Schematic figure of doubly bent crystal monochromator. (b) Design concept of Q-D-B crystal monochromator and definitions of the axes around which the crystal can be rotated independently. (After ref.(13))

述べた様に60KeV程度のX線で $\Delta E/E \leq 10^{-3}$ 、強度が $10^{13}$ photons/s程度の単色X線が必要である。 $10^{-3}$ のエネルギー分解能は一般のX線のエネルギー( $\sim 10$ KeV)では難しいものではないが、60KeVで、しかも強度が欲しいとなるとさほど容易なものではない。それは指向性の高い放射光と言えども、単に平板結晶を用いていると放射光の角度広がり( $\Delta\theta = 1/\gamma$ )からくるエネルギー分散 $\Delta E$ が問題となるからである。すなわちエネルギー分解能 $\Delta E/E$ と $\Delta\theta$ とは次式の関係があり、

$$\Delta E/E = \cot \theta_B \cdot \Delta \theta$$

シリコン(111)反射を用いるとして、60KeVの $\theta_B$ を算出すると $\theta_B = 1.9^\circ$ 、一方6.5GeVから $1/\gamma$ を算出すると $\Delta\theta = 76(\mu\text{rad})$ となりこれを上式に代入すると $\Delta E/E = 2.3 \times 10^{-3}$ となる。したがって高分解能を達成するには、この放射光の広がりを補正する様に湾曲させた分光結晶を用いる必要がある。さて、さらなる高強度の要求を満足させるには図4(a)に示す様な2次元湾曲結晶分光器が

好ましい。一方で放射光による熱負荷の問題から、分光結晶を冷却する必要がある。理想的には図4 (a)で示す様なモノリシックな冷却2次元湾曲結晶を製作することが好ましいが、これは非常に難しいことである。そこで図4 (b)に示す様に冷却1次元湾曲結晶を並べることで2次元湾曲結晶を製作しようとするのが、このQ-D-B結晶分光器である。図4 (b)に示す $\phi_n$ ,  $\omega_n$ ,  $\gamma_n$ は1次元湾曲結晶列を2次元湾曲結晶として動作させるに当り必要となる調整軸で、これらの軸は個々独立に動かすことができる様に設計されている。図5はこの分光器の写真である。それらの機構、調整方法、熱負荷の問題とその解決策等の詳細は原著論文<sup>13)</sup>を参照していただくことにして、ここでは現在得られている性能に関してのみ記しておこう。

Q-D-B結晶分光器は光源から26150mm地点に設置されている。図6 (a), (b)は分光器のすぐ上流のスリットで3.5mm×33mmに整形された放射光を入射した時に得られた60KeV単色X線の写真である。(b)は光源から37700mm地点でフォーカスポイントに対応し、(b)は34000mmでアンダー・フォーカスのため(b)より広がっているのが判る。フォーカス地点で、単色X線は3mm×8mmに集光している。強度はキャリブレーションされたフリー・エア・イオンチャンバーで測定して約 $6 \times 10^{12}$ photons/sである。一方エネルギー分解能はTmK吸収端(59,38KeV)の吸収スペクトルからその微分カーブを取り、その広がりから本来のK吸収端の広がりを差し引いて評価すると88eVを得ている。

## B) 2結晶分光器<sup>10, 14)</sup>

いくつかの種類の出射ビーム定位置型2結晶分光器が考案され、作製されている。PFでは松下ら<sup>15)</sup>によって考案されたカムを用いて機械的にリンクした2結晶分光器が多く用いられている。この分光器は良くデザインされているが1つの難点はBragg角をあまり小さくすることができないこ

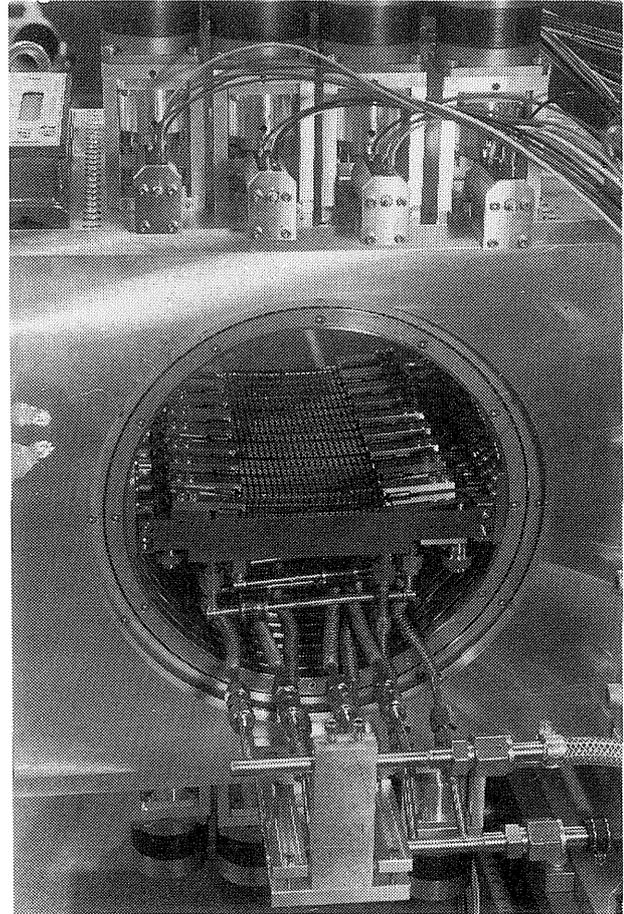


Fig.5 Photograph of the Q-D-B crystal monochromator. (After ref.(13))

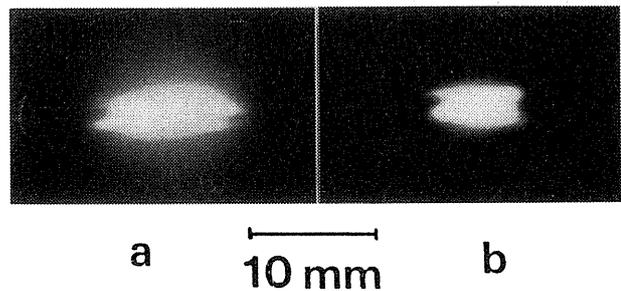


Fig.6 Image of focused and monochromatized 60keV x rays at (a) the under focusing point and (b) just on the focusing point. (After ref.(13))

とである。図7 (a)に模式的に出射ビーム定位置型2結晶分光器の結晶配置を示す。0を中心として第1, 第2結晶が回転していくとすると、出射ビームが定位置であるためにはOA, OBが $OA=h/2\sin\theta$ ,  $OB=h/2\cos\theta$ である必要がある。

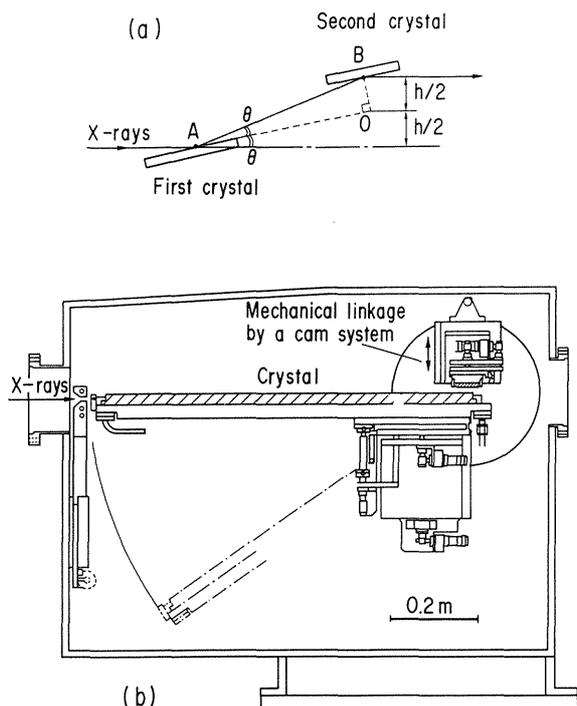


Fig.7 (a) Schematic figure of a double - crystal monochromator for a fixed - exit beam position.  
(b) The new double - crystal monochromator.  
(After ref.(10))

Bragg角が小さくなると、OAが急激に大きくなることが、カム式で機械的なリンクが困難となる理由である。一方前述のスペクトルで示した様にこのビームラインでは100KeV程度までのX線が使用可能であり、シリコン(111)を用いて100KeVのX線を分光する時のBragg角は $1^\circ$ となる。そこで第1結晶の並進運動の変わりに、大きな結晶を用いて結晶の完全性を利用して、これを並進運動におきかえれば、上述の問題は解決する。図7(b)に分光器の側面図を示す。第1結晶を820mmの長さのものを用い、第2結晶だけをカムを用いて機械的にリンクして、出射ビーム定位置型2結晶分光器を実現しようとするものである。この大きさの完全結晶は現在の半導体結晶育成技術をもってすれば、可能であり、すでに入手している。問題は放射光による熱負荷の問題で、この大きな結晶をいかに格子歪みが入らない様にホールド

し、かつ冷却するかという点である。(熱負荷の問題は、このビームライン程度の放射パワーの時、たとえ小さな結晶であっても完全な解決策が見出だされていないのが、現実である。)この理由のため、初めに結晶の長さが300mmのもので、開発研究を行なっている。その結果、現在水圧による湾曲が問題となること、最大放射パワー( $K_y=15, K_x=0$ )では直接冷却でも熱歪みが問題となること、円偏光の状態( $K_y=15, K_x=1$ )では簡接冷却の方が、水圧による湾曲もなく、かつ熱負荷があまりなく熱歪みもないのでむしろ直接冷却よりも良いこと等が判ってきている。

もう1点重要な知見は、第2結晶の熱問題である。これは第1結晶に入射した白色X線が、コンプトン散乱しそれが第2結晶部に入射して加熱する現象である。この上昇温度は $30^\circ$ にも達し、安定した単色X線を導くには第2結晶も冷却する必要がある。我々は冷却サジタル湾曲結晶を試みている。詳細は関係論文<sup>14)</sup>を参照していただくこととして、概要だけにとどめると、Millsら<sup>16)</sup>によって考案されたサジタル結晶の裏側に三角形のリン青銅の板を液体Ga-In合金を間に塗布して熱接触を取り、そのリン青銅板を水冷した銅のホルダーに固定するものである。その結果、現在6~28KeVは渡って安定してサジタル集光した単色X線を得られるに至っている。

さて、若干のコメントを追加しておくと、このコンプトン散乱による加熱は少なくともPFリング(2.5GeV級)では経験がなく、AR(6.5GeV級)になって初めて経験したものである。これは高エネルギーX線の吸収断面積が光電吸収可程よりもコンプトン散乱可程の方で主に定まる様になるからである。したがってこのコンプトン散乱加熱は今後の次世代放射光施設のビームラインでは常に注意する必要があるであろう。

## 2・4 実験装置

### A) 磁気コンプトン散乱実験装置<sup>17)</sup>

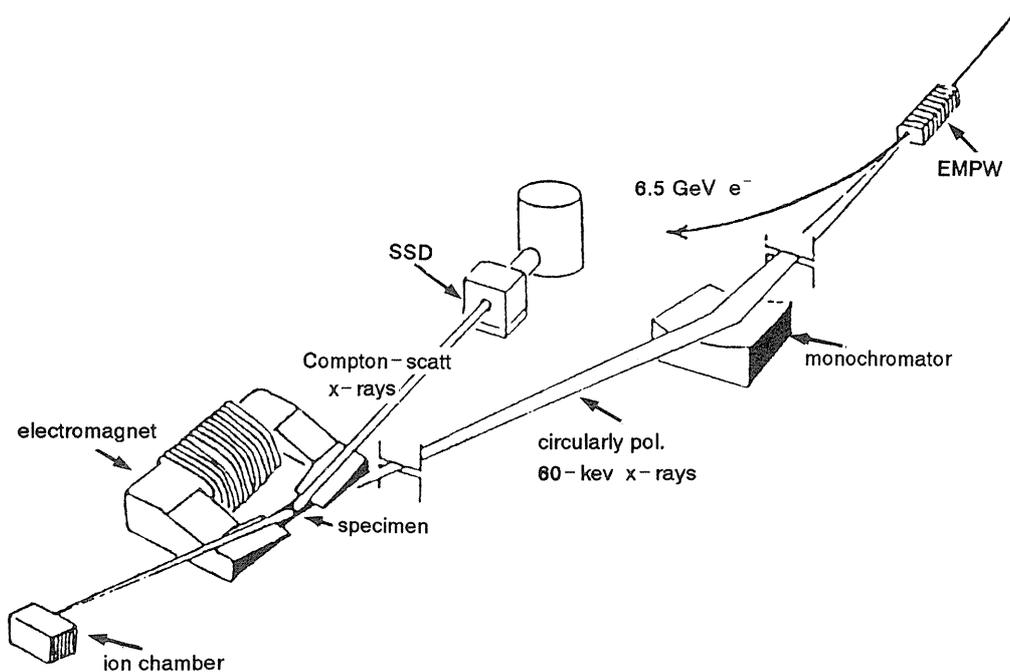


Fig.8 Schematic drawing of the experimental arrangement. (After ref.(17))

我々の最終目標は後に述べる高分解能コンプトン散乱実験装置と組み合わせて高分解能磁気コンプトン散乱実験<sup>18)</sup>を進めることである。しかし、従来のSSDの分解能でも十分である実験テーマは多数あり、その実験装置に関してここでは記述する。

図8にその概要を示す。円偏光している軸上付近の放射光だけを第1入射スリットで選択し、Q-D-B結晶分光器で単色化する。ビーム強度モニターのイオンチャンバ、第2入射スリットを通り、横方向のフォーカス位置に電磁石間マウントされた試料を置く。試料からのコンプトン散乱のエネルギースペクトルは後方に置かれたSSDによって測定される。図では試料からのコンプトン散乱が試料を透過する配置になっているが、これは薄い試料の場合で、試料の形状、厚さに合わせて反射の配置等に変更する場合もある。SSDは66×33mm<sup>2</sup>の中に13素子のピュアーGeからなる多素子半導体検出器で、それらのシグナルは独立な13組のスペクトロスコーピー・アンプ、200MHz-ADC、MCAを用いて検出するシステムと成っている。多素子検出器を導入している理由は、現在

のコンプトン散乱強度の計数率は入射X線強度で定まっているのではなく、検出器の後のADC、MCAのデットタイムで定まっている。分解能が許す1素子当りの最大計数率は約 $3 \times 10^6$ cps程度である。コンプトン散乱実験の場合には散乱ベクトルの方向に関して許容範囲が広いので、許される範囲で素子を並べて、独立に測定し、積算すれば、素子の数の分だけ計数率を上げることができる。実験では磁場を10秒程度で反転しながらその時のスペクトルをその磁場方向のメモリーに加算し、最後に(+), (-)の磁場方向のスペクトルを差し引きすることで磁気コンプトンプロフィール(MCP)を測定することが出来る。

#### B) 高分解能コンプトン散乱実験装置

コンプトン散乱のエネルギースペクトルをSSD以上の分解能を持って分光するには現在の所、結晶分光に頼らざるを得ない。放射光を用いて、分光結晶と位置敏感形X線検出器(PSPC)を組み合わせ初めて高分解能コンプトン散乱実験装置を製作したのはG. LoupiasとJ. Petiau<sup>19)</sup>である。彼女ら

のスペクトロメータは入射X線エネルギーは15KeVであるが分解能は0.15Atomic unit(SSDでは0.4 Atomic unitが限界)を達成し、1つの方針を指し示した。

しかし、15KeVはあまりに低エネルギーで、これではLi, Be, Cなどの極限られた物質しか測定することができない。そこで入射X線エネルギーを15KeVから30KeVに引き上げること、また検出効率を上げることからPSPCからイメージング・プレートに変更する等の努力が著者を含めた日本のグループによって行なわれ<sup>20)</sup>、現在この分野において世界をリードする立場となっている。BL-NE1A1ではさらに対象物質を広げるため60KeVの入射X線エネルギーでかつ、異なった方位のコンプトンプロファイルから運動量空間での3次元再構成が容易にできる様、同時に4方位のプロファイルが測定できる高分解能コンプトン散乱実験装置を製作・調整している<sup>21)</sup>。装置の概要は基本的には前回のもと同じで、Cauchoisタイプの湾曲結晶アナライザとイメージングプレートの組み合わせであるが、さらに図9に示す様に4方位のコンプトンプロファイル測定アームがサンプルを取り囲んでいる。現在、バックグラウンド、アナライザ結晶の均一性、イメージングプレートの均一性等の問題を決定すべく調整を行っている。

#### C) 磁気吸収スペクトロスコピー測定装置

基本的にはこの装置は一般のEXAFSの配置の間にサンプルの磁化方向をそろえる電磁石を挿入した形となっている。サンプルを薄膜にすることができる場合にはイオンチャンバーを上下流に位置した透過型の配置をとり、サンプルを薄膜にできない場合には蛍光X線をイオンチェンバー型検出器(Lytle Detector)を用いて測定する。

磁気吸収スペクトルは磁気コンプトン散乱と同様に磁場の向きを電磁石で2~4秒の間隔で切りかえながら4~10回程度くりかえし吸収係数 $\mu(\uparrow)$ 、 $\mu(\downarrow)$ を測定し、その差分 $\Delta\mu = \mu(\uparrow) - \mu(\downarrow)$

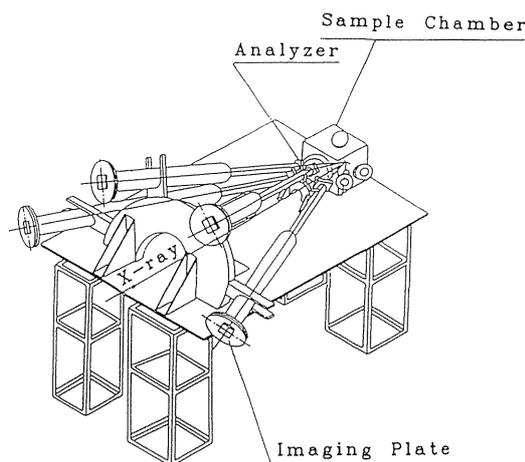


Fig.9 Schematic drawing of the spectrometer for high resolution Compton scattering experiments. The spectrometer has four sets of a Cauchois-type Si 422 bent-crystal analyzer and an imaging plate that are arranged on the surface of a cone and share a scattering angle of 160 degrees. (After ref.(21))

のスペクトルがそれに対応する。シグナルの大きさはサンプルの物質に大きく依存するが、 $10^{-4}$ 以下の統計精度までのノイズレベルにする必要があり、モニターガスの種類・流量、エレクトロニクスの接地等には詳細なる注意が必要である。また分光器によるディチューニングによって確実に高調波を除去することも重要な点である。

#### D) 磁気 Bragg 散乱測定装置

X線磁気 Bragg 散乱における円偏光X線の利用は、多くの著者が指摘している様に<sup>1,2)</sup>、Ferroの磁性体からの電荷による Bragg 散乱と磁気散乱との干渉項が観測され得ることであろう。さらにX線磁気散乱の散乱振巾の中で、軌道角運動量 $L$ と電子スピン $S$ との依存性を示す偏光因子が異なっていることから、Blumeらによって指摘されている様に<sup>3)</sup>2つの異なる磁化方向の測定から、 $L$ と $S$ の量を区別して評価することができる点が重要な点である。

本ビームラインに設置され、現在調整している

磁気 Bragg 散乱ゴニオメータは、上記の Ferro の磁性体における  $\mathbf{L} \cdot \mathbf{S}$  分離を目的として設計されている。すなわち、基本的にはサンプル・ゴニオとディテクターゴニオの2軸ゴニオメータに、磁化方向を散乱面内で自由に変えることができる様に、さらにもう一軸付け加わった3軸ゴニオメータである。磁場の強さは0.5Tまで可能であり、サンプル温度は液体 He 供給により、原理的に He 温度まで可変であるクライオスタットは設計され、調整中である。

### 3 実験例

#### 3・1 円偏光度測定<sup>22)</sup>

ビームラインを建設した時に最初にやるべき重要なことはビームラインに導かれた放射光の評価である。特に本ビームラインの様に円偏光を得るために建設した場合には、その円偏光度評価は重要な実験であり、これを最初の立上げ実験として行なった。円偏光度の評価は多結晶鉄からの磁気コンプトン散乱強度を測定することで行なった。そこで初めにコンプトン散乱の散乱断面積について述べておこう。

コンプトン散乱<sup>23)</sup>は物質中の電子に入射 X 線のエネルギーを与えて生ずる非弾性散乱で、その時の入射 X 線のエネルギーからのズレ (コンプトンシフト) は基本的にエネルギー、及び運動量の保存則より求められることは初等課程の物理学の教科書を教える所である。このコンプトンシフトは次式で与えられる。

$$E_0 - E = E_0 \left( 1 - \left( 1 + \frac{E_0}{mc^2} (1 - \cos\theta) \right)^{-1} \right)$$

ここで  $E_0$ ,  $E$  は入射 X 線及び散乱 X 線のエネルギーで、 $\theta$  は散乱角、 $mc^2$  は電子の静止エネルギーである。さて物質中での電子は運動量  $\mathbf{P}$  を持っているので、コンプトンピークは上式の与えるエネルギーを中心にして、そのドップラー効果のため広がったピークとなる。これがコンプトン散

乱が物質中電子の運動量空間における密度分布に関する情報を与える理由であり、そのコンプトンピークをコンプトンプロファイルと呼ぶ。

ドプラーシフト  $E_D$  は次式で与えられる。

$$E_D = \frac{\hbar}{m} (\mathbf{P} \cdot \mathbf{K}) / \left\{ 1 + \frac{E_0}{mc^2} (1 - \cos\theta) \right\}$$

ここで  $\mathbf{K}$  は散乱ベクトルであり、 $E_D$  は運動量  $\mathbf{P}$  の  $\mathbf{K}$  方向への射影で定まることを示している。 $\mathbf{K}$  の方向を Z 軸として、 $\mathbf{P} \cdot \mathbf{1}_z = P_z$  となる電子密度を  $J(P_z)$  とすれば、 $J(P_z)$  は次式で与えられ、これがコンプトンプロファイルに対応する。

$$J(p_z) = \iint [n^+(p_x, p_y, p_z) + n^-(p_x, p_y, p_z)] dp_x dp_y$$

ここで  $n^+(p_x, p_y, p_z)$ ,  $n^-(p_x, p_y, p_z)$  は運動量空間における電子密度で、 $+$ ,  $-$  の添字はスピンの上下に対応している。微分散乱断面積  $\left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} \right)$  はインパルス近似が成立する範囲内において、上記の  $J(p)$  に比例し、かつ  $P_z \ll mc$  の近似のもとで次式で表わされる<sup>24)</sup>。

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = \frac{r_0^2}{2} \left( \frac{E}{E_0} \right)^2 \cdot C_0(k_0, k, \theta, P_z) \cdot J(p)$$

$$C_0(k_0, k, \theta, P_z) = (1 + \cos^2\theta) + \frac{|\mathbf{k}_0| - |\mathbf{k}|}{mc} (1 - \cos\theta) + P_z \sin^2\theta$$

ここで  $\mathbf{k}_0$ ,  $\mathbf{k}$  は入射 X 線・散乱 X 線の波数ベクトルであり、 $P_z$  は直線偏光成分である。

さて以上が通常のコンプトン散乱の微分散乱断面積である。入射 X 線が円偏光している場合、上記の電荷による散乱断面積に次式で表わされるスピンの依存した項が付け加わる<sup>24)</sup>。

$$\left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} \right)_{\text{spin}} = \frac{r_0^2}{2} \left( \frac{E}{E_0} \right)^2 \cdot C_1(k_0, k, \theta, \sigma) \cdot P_c \cdot J_{\text{mag}}(p_z)$$

$$C_1(k_0, k, \theta, \sigma) = -(1 - \cos\theta) \left( \sigma \cdot \frac{\mathbf{k}_0 \cos\theta + \mathbf{k}}{mc} \right)$$

$$J_{\text{mag}}(p_z) = \iint [n^+(p_x, p_y, p_z) - n^-(p_x, p_y, p_z)] dp_x dp_y$$

ここで  $J_{\text{mag}}(p_z)$  を磁気コンプトンプロファイル (MCP) を呼ぶ。また上式で  $P_c$  は円偏光度,  $\sigma$  はスピンの方向を表す単位ベクトルである。上式で明らかな様に  $J_{\text{mag}}(p_z)$  は磁性電子の運動量空間における電子密度に対応している。

さて円偏光度を求めるには,  $\sigma$  の方向を反転しながらコンプトン散乱強度  $I^+$ ,  $I^-$  を測定し, スピンに依存した散乱強度の比, すなわち  $R = I^+ - I^- / I^+ + I^-$  を測定すれば求められる。

$$R = P_c \cdot \frac{C_1(\mathbf{k}_0, \mathbf{k}, \theta, \sigma)}{C_0(\mathbf{k}, \mathbf{k}, \theta, P_c)} \cdot \left( \frac{n^+ - n^-}{n^+ + n^-} \right)$$

ここで  $n^+$ ,  $n^-$  はスピン上向き, 下向きそれぞれの電子の総数に対応する。円偏光度  $P_c$  を求めるだけであればコンプトンプロファイルを測定する必要はなく, 全体の強度を測定すれば良い。それに対応して,  $n^+$ ,  $n^-$  も密度ではなく全体の総数をもってすれば良いのである。鉄の多結晶である場合は  $(n^+ - n^-) / (n^+ + n^-) = 0.080^{22)}$  の値を用いて  $P_c$  を評価した。

実験は Q-D-B 分光器を用いず, 単なる Ge(400) 分光結晶を用いたが, 他は図8に示す様な配置で行ない, スリットを上下にスキャンし, E-MPW からの放射光の上下方向の観測角  $\psi$  に対する円偏光度  $P_c$  及び強度  $D$  を測定した。分光エネルギーは 60KeV である図10にその測定結果を示す。(a) は  $K_x=1$ ,  $K_y=15$ , (b) は  $K_x=1.5$ ,  $K_y=15$  の時の円偏光度と強度の  $\psi$  依存性を示している。白丸が測定値で, 横方向のバーはスリット巾を示し, 縦方向はエラーバーを示している。実線は計算値を示している。図で明らかな様に光軸上で ( $\psi=0$ ) で  $P=0.7$  程度の円偏光 X 線が得られており, その円偏光度, 強度分布はよく計算値と一致している。 $\psi$  の大きい所で若干計算値と測定値との間で不一致が見られるがこれは挿入光源をはさむ上下流のベンディングマグネットからのフリンジング・フィールドによる放射光が混ざっているためのもと考えられる。

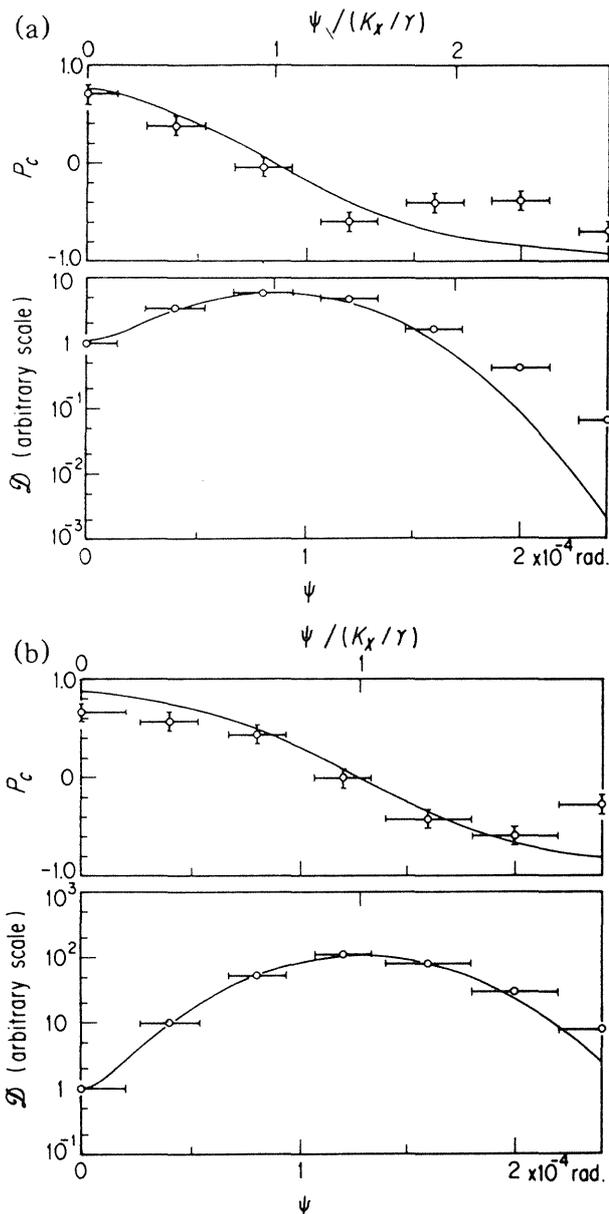


Fig.10 The dependence of the degree of circular polarization,  $P_c$ , and the angular flux density,  $D$ , of the radiation at 60 keV on the vertical observation angle,  $\psi$ , in the cases of (a)  $k_x=1$  and (b)  $k_x=1.5$  with  $k_y=15$ . Circles denote the measured values and solid lines represent the results of a calculation. (After ref.(22))

### 3・2 磁気コンプトン散乱実験

これに関する多くの実験結果は最近坂井が日本結晶学会誌に解説<sup>25)</sup>を出しているのので, ここでは極く最近の結果である Gd の実験<sup>26)</sup>に限って紹介して

おこう。Gdはその飽和磁化が  $7.63 \pm 0.02 \mu_B / \text{atom}^{27)}$  であることが知られている。その飽和磁化の大部分は  $(4f)^7$  電子からくるもので、これが  $7 \mu_B / \text{atom}$  に対応する。そして残りは  $4f$  電子との RKKY 相互作用によってスピン分極した  $5d$ ,  $6s$  の伝導電子からの寄与と考えられている。一方コンプトン散乱は運動量空間の電子分布に関する情報を与えるので、運動量の小さい伝導電子からの寄与は大きな運動量をもっている  $4f$  電子からの寄与とプロファイル上で容易に分離できるものと考えられる。

多結晶の Gd サンプルを、液体  $N_2$  中に入れた電磁石から真空槽に延ばした磁極間にマウントし、サンプル温度を  $106\text{K}$  で磁気コンプトンプロファイルを測定した。Gd の K 吸収 (K 吸収端:  $50.239\text{KeV}$ ) をさけるためと同時に高調波によって励起される  $K_{\alpha}$ ,  $K_{\beta}$  蛍光 X 線がコンプトンプロファイル中に影響を与えない様に、入射 X 線のエネルギーは  $45.2\text{KeV}$  にセットした。

図11は得られた磁気コンプトンプロファイルである。実線は F. Biggs ら<sup>28)</sup> によって計算されている  $4f$  電子の Hartree - Fock の波動関数からのコン

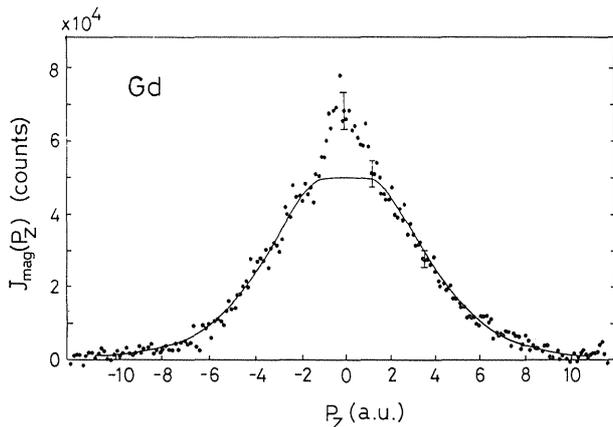


Fig.11 The magnetic - electron Compton profile of ferromagnetic Gd at  $106\text{K}$  measured with circularly polarized synchrotron radiation x rays of  $45.2\text{keV}$ . The solid line is the relativistic Hartree - Fock impulse Compton profile of atomic  $4f$  electrons.<sup>28)</sup> The error bars denote the statistical accuracy. (After ref.(26))

プトン・プロファイルである。運動量  $|P_z| > 2\text{a.u.}$  の領域では実験結果と  $4f$  電子の寄与を示す実線は良く一致している。すなわち全体的に見ればコンプトンプロファイルは  $4f$  電子の寄与で説明され得る。しかし  $|P_z| < 2\text{a.u.}$  の領域では明らかな実験と計算値との不一致が見られる。これは運動量の小さい伝導電子のスピン分極の加算的な寄与であると考えられる。図の実線が  $7 \mu_B / \text{atom}$  に対応するとすると、この加算的な寄与は  $0.53 \pm 0.08 \mu_B / \text{atom}$  となる。この値は若干小さいけれどもほぼ予想される  $0.63 \mu_B / \text{atom}$  の値に対応している。

この実験例で明らかな様に、磁気コンプトン散乱は伝導電子の様な運動量の小さい電子のスピン分極に関する寄与を測定するのに非常に有力である。この事情は  $3d$  金属の場合も同じで、例えば Fe, Ni 等では主な寄与の  $3d$  電子の他に  $4s4p$  電子が交換相互作用のため、負に分極していることが磁気コンプトン散乱により明らかとなっている。

### 3・3 高分解能コンプトンプロファイル

高分解能コンプトンプロファイル測定の最終目的の1つは前にも述べた様にいくつかの異なる方位のプロファイル測定から  $\rho(P)$  の3次元再構成である。このためのデータセット (48方位) が V 結晶をサンプルにしてすでに測定しており、現在データ解析中である。ここではその  $(100)$  方位で測定したコンプトンプロファイルに見られる方位異方性についてのみ紹介しておこう<sup>29)</sup>。

和光らのバンド計算によれば<sup>30)</sup> そのフェルミ面は図12(a)で示す様に電子正孔のジャングルジム構成をとっている。そのジャングルジムの骨組みの方向が  $\langle 100 \rangle$  であるので  $\langle 100 \rangle$  方向のコンプトンプロファイルでは  $P_z=0$  の中心で頭がへこんだプロファイルとなる。図12(b)に得られた高分解能コンプトンプロファイルを示す。さらにプロファイルをよく見ると  $P_z=1.09$  付近にキングが見られる。これは(a)に示す様にその周期場のために次の

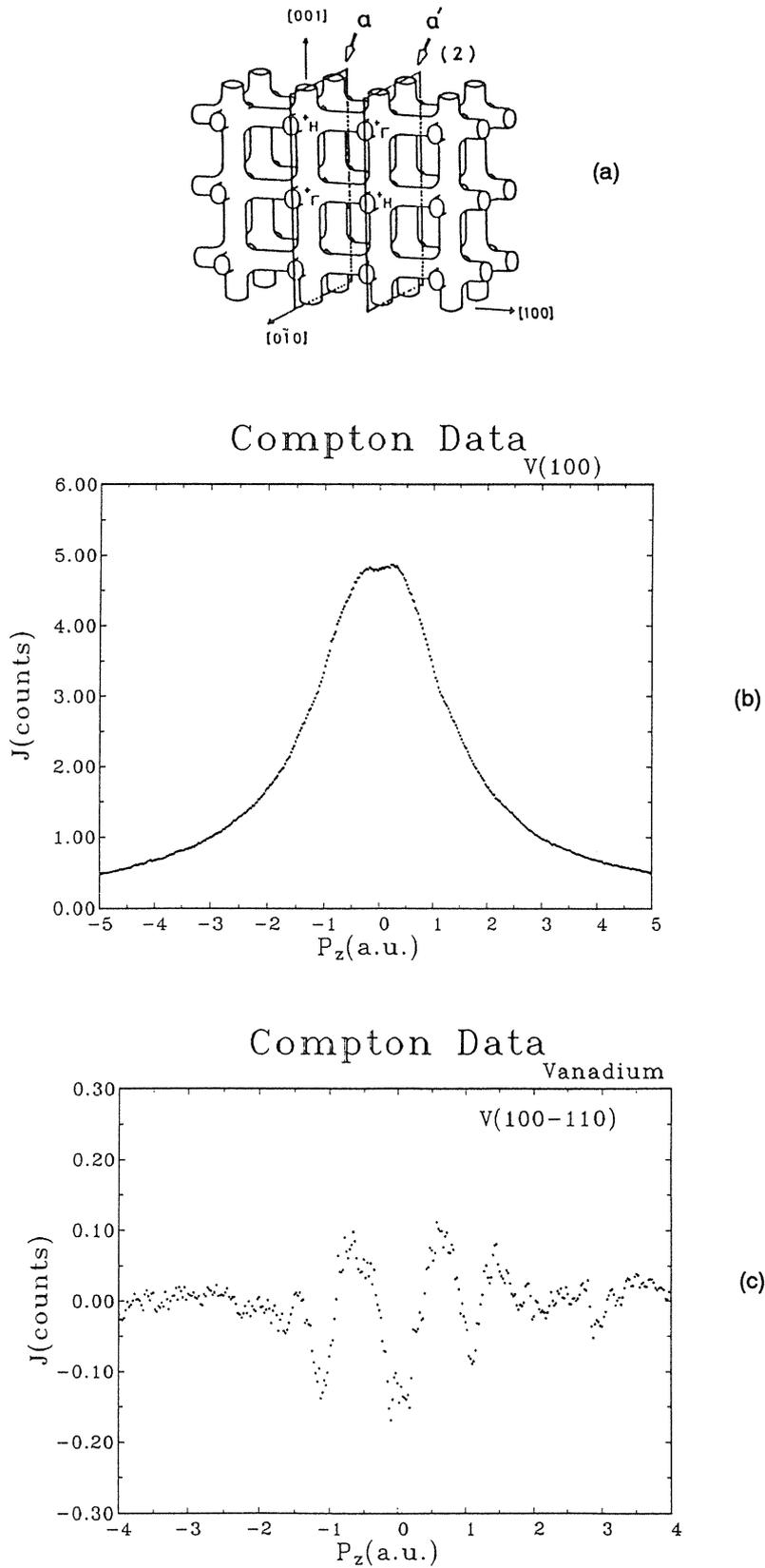


Fig.12 (a) jungle – gym structure of electron holes in V. The distance between a and a' planes corresponds to 1.09 a.u.. (After ref.(30))  
 (b) Compton profile of V(100) and (c) the difference of V(100) and V(110) Compton profiles. (After ref.(29))

ジャングルジムの骨組みの場所に対応しているためである。この事情は図12(c)に示す異方性プロファイル(100) - (110)でより容易に見ることが出来るよう。

さて以上はほんの一例であるが高分解能コンプトン散乱によってフェルミ面の形状に関する知見が得られ、そして近い将来に3次元再構成の結果を紹介できるものと確信している。

### 3・4 磁気吸収スペクトロスコピー

磁気吸収スペクトロスコピーは岡山大の圓山氏、PFの岩住氏が中心になって進めている。ここでは3d金属のFeとNiの磁気吸収スペクトルを紹介しておこう<sup>31)</sup>。残念ながらこれらの測定は世界初ではなくそのパイオニアの仕事は前述しているG. Schützらによって行なわれている<sup>4)</sup>。ここであえて

Fe, Niの実験データを紹介する理由は、ここで述べておきたいことは新しい物理的知見というよりもこの実験手法がどのような情報を与えるかということだからである。

図13(a), (b)にFe, Ni, K吸収端におけるXANES及び磁気XANESを示す。図では吸収曲線における第1変曲点を原点として整理してある。というのはこのエネルギーをある意味でFermiレベルを見なし得るからである。さて、FeとNiでの磁気XANESを見比べると大変異なっている。Feの場合は $\Delta\mu t$ の正のピークがFermiレベル上に位置し、+2eVの所で正から負に変わり、+5eVの所に負のピークを持っている。一方Niの場合は正のピークはなく+4eVの所に負のピークを持っている。この実験結果はSchützらの結果と一致しており、4Pバンドの非占有レベルにおけるス

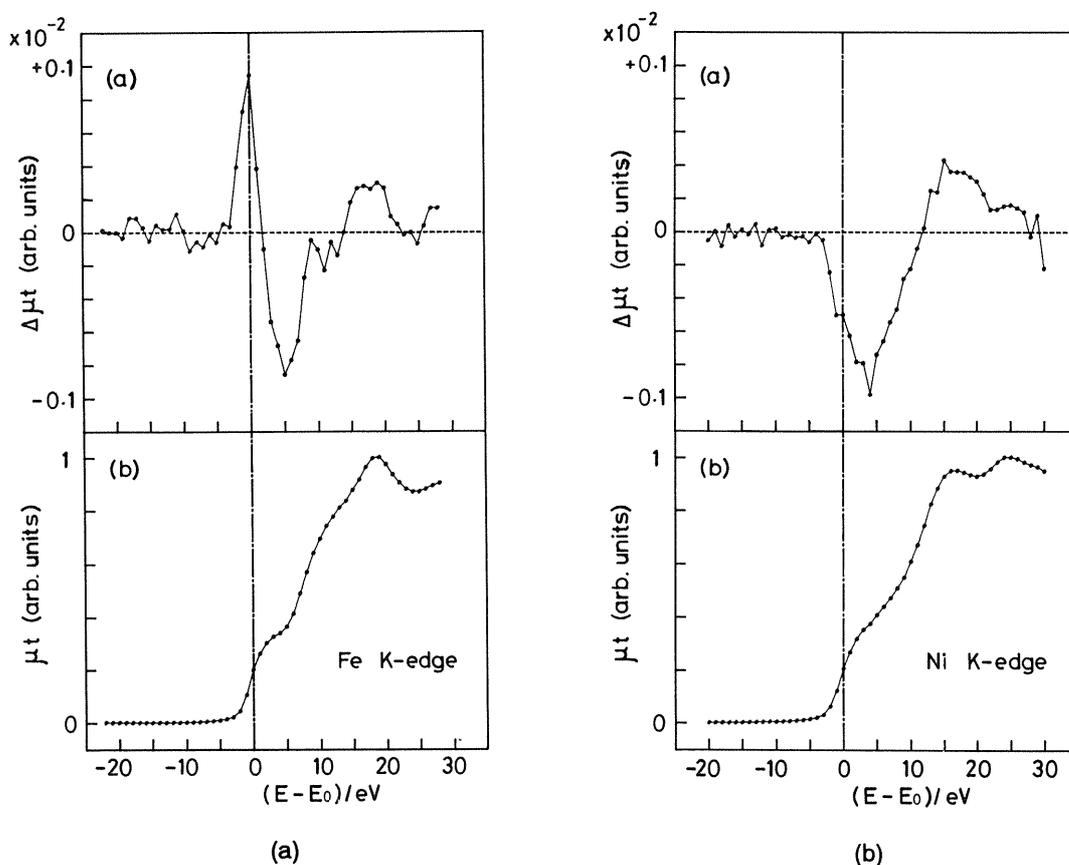


Fig.13 Magnetic (upper) and usual (below) XANES of K-edge of (a) pure Fe and (b) pure Ni. (After ref.(31))

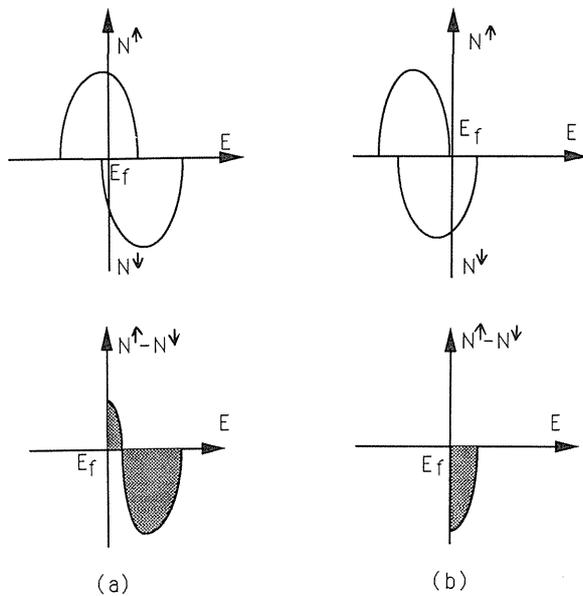


Fig.14 Schematic drawing of electron densities of up and down spin 3d bands (upper) and their subtractions (below) in (a) Fe and (b) Ni. The subtracted electron densities qualitatively well explain the experiments.

ピン分極の情報を与えている。上記の極立った Fe と Ni における磁気 XANES の違いは定性的に以下の様に説明される。Fe の局在している 3d バンドはマジョリティ・スピンバンドにまだ非占有レベルを持っている<sup>32)</sup>。したがって非占有レベルの 3d 電子のマジョリティ・スピンとマイノリティ・スピンの状態密度の差は模式的に図14(a)に示す様に Fermi レベル直上にマジョリティー・スピン側にピークを作り、エネルギーが上がるとともに減少し、続いてマイノリティー・スピン側にピークを作ることが予想される。一方 Ni の 3d 電子レベルはマジョリティ・スピンバンドが完全に専有されており<sup>33)</sup>、その結果非占有レベルにおけるマジョリティー・スピンとマイノリティ・スピンの状態密度の差は図14(b)に示す様にマイノリティー・スピン側だけにピークを作ることになる。以上の説明は 3d バンドの非占有レベルにおける挙動であるが、実験結果を良く説明している。そしてこのことは逆に 4P 電子状態と 3d の電子状態は非常に強く混

成化 (hybridize) していることを示している。

さて以上のように磁気吸収スペクトルは非占有レベルにおけるスピン分極に関する情報を与え、一方磁気コンプトン散乱は占有レベルにおけるスピン分極の情報を与えるので互いに相補的な実験手段であると言えよう。また一方並河らによって見出された共鳴 X 線磁気 Bragg 散乱も非占有レベルにおけるスピン分極の情報を与える<sup>3)</sup>。実際今回円偏光 X 線で得ている Ni の磁気 XANES (図13(b)) は並河らの結果と良い一致を示している。

#### 4 まとめ

残念ながら磁気 Bragg 散乱に関しては現在の所実験に成功しておらずここに報告することはできなかった。しかし前にも述べた様に円偏光 X 線を用いて Ferro の磁性体における S と L の分離は重要な実験テーマと考えており、今後も努力していく予定である。この実験は本質的に実験的困難さを有している。というのは L の大きな強磁性体は本質的に異方性が大きく、従って磁化の反転が安易には行えないということである。従って磁場反転を行なって測定しようとするならば超電導マグネットを導入するか、逆に戻ってフィールドクーリングし、磁化をそろえておいて、入射 X 線の円偏光度を切りかえるという実験方法も考える必要があるかも知れない。

一方 SSD を用いた磁気コンプトン散乱実験は本ビームラインの建設によって発展いちぢるしい分野であろう。本報告には紹介していないが、磁気コンプトン散乱の方位異方性から、その三次元再構成の実験、また完全性の高い YIG 結晶を用いて安在波下での磁気コンプトン散乱の実験等も行われている。しかし一方で最終目的の高分解能コンプトンスペクトロメーターと組み合わせた高分解能磁気コンプトン散乱実験は、まだ現在の所成功していない。その理由は 1 つは強度の問題もあるが、一方で検出器であるイメージングプレートの均一性と、実験装置全体のバックグラウンドの間

題が大きい。それらの点の改善をはかりながら努力していきたい。

もう1つ明記しておいた方が良いと思われる点はマンパワーの問題であろう。本文中で示した様に円偏光X線の利用は磁性体への応用が主である。それではNEIで実験している顔ぶれを見てみると、私を筆頭にして“X線回折・散乱屋”であって“磁性屋”という顔ぶれはまれである。もしくは両方の顔を持ち得る人達の実験をしている。私の様な“X線回折・散乱屋”の立場から見れば“磁性屋”または“中性子散乱屋”の方々が良いテーマをもって円偏光X線を使いに来られることを切に願うしだいである。その意味でこの報告が一助になれば幸いである。

## 謝辞

本ビームラインを建設するに当り、総責任者として御指導いただきました放射光実験施設・安藤正海教授に深く感謝申し上げます。また挿入光源部分を担当されました北村英男教授、山本樹助手、塩屋達郎氏、基幹チャンネル部分を担当されました現東北大・佐藤繁教授、放射光実験施設金谷範一助手、浅岡聖二氏、X線ビームラインを伴に担当して下さいました岩住俊明助手、佐藤昌史氏、軟X線ビームラインを担当されました宮原恒昱教授、北島義典助手、インターロックシステムを担当されました飯田厚夫助教授、実務の建設作業を助けて下さいました三国晃氏等の方々のおかげなくして本ビームラインは建設できなかったことを明記するとともに深く感謝申し上げます。また本ビームラインの性格上トリスタン加速器の方々のおかげなくして運転することすら不可能であり、ここに新ためて感謝申し上げるとともに、特に窓口役の労を取って下さいました黒川真一教授並びに吉岡正和助教授に深く感謝申し上げます。

さて一方ビームラインの建設後、実験成果を出すべく努力して下さいました、塩谷亘弘水産大教授、理化学研究所・坂井信彦博士、伊藤正久博

士、桜井吉晴博士、田中良和博士、群馬大学・伊藤文武教授、桜井浩氏、東大生研・七尾進助教授、渡辺康裕博士、岡山大学・山寄比登志教授、圓山裕助手、小泉昭久氏に深く感謝申し上げます。

## 文献

- 1) 例えば M.Blume: J. Appl Phys. **57**. (1985) 3615.  
D. Gibbs, D. E. Moncton and K.L. D'Amico: J. Appl. Phys. **57** (1985) 3619.  
S.W. Lovesey; J. Phys. C: Solid State Phys. **20**, (1987) 5625.  
D. Gibbs: Physica **B159** (1989) 145.
- 2) M. Blume and D. Gibbs: Phys. Rev. **B37** (1988) 1779
- 3) K.Namikawa, M. Ando, T. Nakajima and H. Kawata: J. Phys. Soc. Jpn. **54** (1985) 4099
- 4) G. Schütz, W. Wagner, W. Wilhelm, P. Kienle, R. Zeller, R. Frahm and G. Materlik: Phys. Rev. Lett. **58** (1987) 737
- 5) N. Sakai and K. Ono; Phys. Rev. Lett. **37** (1976) 351.  
N. Sakai and K. Ono; J. Phys. Soc. Jpn **42** (1977) 770
- 6) M.J. Cooper, D. Laundy, D.A. Cardwell, D.N. Timms and R.S. Holt; Phys. Rev. **B34** (1986) 5984
- 7) D.M. Mills; Phys. Rev. **B36** (1987) 6178
- 8) S. Yamamoto and H. Kitamura; Jpn. J. Appl. Phys. **26** (1987) L1613
- 9) S. Yamamoto, T. Shioya, S. Sasaki and H. Kitanura: Rev. Sci. Instrum. **60** (1989) 1834
- 10) H. Kawata, T. Miyahara, S. Yamamoto, T. Shioya, H. Kitamura, S. Sato, S. Asaoka, N. Kanaya, A. Iida, A. Mikuni, M. Sato, T. Iwazumi, Y. Kitajima and M. Ando: Rev. Sci. Instrum. **60** (1989) 1885

- 11) 北村英男 編集 “放射光実験施設挿入光源ハンドブック ('90)”; KEK Report 89-24
- 12) S. Sato, S. Asaoka, I. Nagakura and N. Kanaya; Rev. Sci. Instrum; **60** (1989) 1965
- 13) H. Kawata, M.Sato, T. Iwazumi, M. Ando, N. Sakai, M. Ito, Y. Tanaka, N. Shiotani, F. Itoh, H. Sakurai, Y. Sakurai, Y. Watanabe and S. Nanao; Rev. Sci. Instrum, **62**, in press.
- 14) T. Iwazumi, M. Sato and H. Kawata; To be published in Rev. Sci. Instrum.
- 15) T. Matsushita, T. Ishikawa, and H. Oyanagi; Nucl. Instrum. Methods **A246** (1986) 377
- 16) D.M. Mills, C. Henderson, and B.W. Batterman, Nucl. Instrum. Methods **A246** (1986) 356
- 17) N. Sakai: AIP Conference Proceedings 215 (1990) 749  
H. Kawata, Y. Tanaka, N. Sakai, M. Ito, F. Itoh, H. Sakurai and T. Iwazumi; Photon Factory Act. Rep. (1990), 343
- 18) N. Sakai, N. Shiotani, M. Ito, F. Itoh, H. Kawata, Y. Amemiya, M. Ando, S. Yamamoto, and H. Kitamura ; Rev. Sei. Instrum: **60** (1989) 1666
- 19) G. Loupias and J. Petiau: J. Physique **41** (1980) 265
- 20) N. Shiotani, N. Sakai, F. Itoh, M. Sakurai, H. Kawata, Y. Amemiya, and M. Ando: Nucl. Instrum Methods, **A275** (1989) 447.  
F. Itoh, M. Sakurai, T. Sugawa, K. Suzuki, N. Sakai, M. Ito, O. Mao, N. Shiotani, Y. Tanaka, Y. Sakurai, S. Nanao, H. Kawata, Y. Amemiya and M. Ando; Rev. Sei. Instrum. **60** (1989) 2402
- 21) Y. Sakurai, M. Ito, T. Urai, Y. Tanaka, N. Sakai, T. Iwazumi, H. Kawata, M. Ando, and N. Shiotani: to be published in Rev Sci. Instrum.
- 22) S. Yamamoto, H. Kawata, H. Kitamura, M. Ando, N. Sakai and N. Shiotani; Phys. Rev. Lett. **62** (1989) 2672
- 23) 例えば B. Williams ed; “Compton Scattering”, M.J. Cooper; Rep. Prog. Phys. **48** (1985) 415
- 24) P.M. Platzman and N. Tzoar; Phys. Rev. **B2** (1970) 3556. N. Sakai and H. Sekizawa; Phys. Rev. **B36** (1987) 2164
- 25) 坂井 信彦: 日本結晶学会誌 **33** (1991) 13
- 26) N. Sakai, Y. Tanaka, F. Itoh, H. Sakurai, H. Kawata and T. Iwazumi J. Phys. Soc. Jpn **60** (1991) 1201
- 27) L.W. Roeland, G.J. Cock, F.A. Muller, A.C. Moleman, K.A. MeEwen, R.G. Jordan and D.W. Jones; J. Phys. F. **5** (1975) L233
- 28) F. Biggs, L.B. Mendelsohn and J.B. Mann: Atomic Data and Nuclear Data Tabhes **16** (1975) 201
- 29) N. Shiotani, Y. Tanaka, M. Ito, N. Sasaki, F. Itoh, H. Sakurai, Y. Sakurai, S. Nanao, T. Iwazumi, H. Kawata, and M. Ando: Photon Factory Act. Rep.(1990), 341.
- 30) S. Wakoh and J. Yamashita; J. Phys. Soc. Jpn. **35** (1973) 1406
- 31) H. Maruyama, T. Iwazumi, H. Kawata, A. Koizumi, M. Fujita, H. Sakurai, F. Itoh, N. Sakai, K. Namikawa, N. Shiotani, H. Yamazaki and M. Ando; J. Phys. Soc. Jpn. **60** (1991) 1456
- 32) S. Wakoh and J. Yamashita; J. Phys. Soc. Jpn. **21** (1966) 1712
- 33) J.W.D. Connolly: Phys. Rev. **159** (1967) 415

