

解説

APPLE-2 型アンジュレータの高速位相変調を用いた 高分解能円二色性実験

安居院 あかね^{1*}, 吉越 章隆¹, 中谷 健^{1,2}, 松下 智裕²
 斎藤 祐児¹, 水牧 仁一朗², 横谷 明德¹, 田中 均²
 宮原 義一², 島田 太平³, 竹内 政雄², 高雄 勝²
 佐々木 茂樹², 青柳 秀樹², 工藤 統吾², 佐藤 一道²
 呉 樹奎², 大熊 春夫²

¹日本原子力研究所・関西研究所・放射光科学研究センター*

²高輝度光科学研究センター, ³日本原子力研究所・中性子科学研究センター

Operation of Circular Dichroism Measurements with Periodic Photon-Helicity Switching by an APPLE-2 type Undulator at BL23SU in SPring-8

Akane AGUI¹, Akitaka YOSHIGOE¹, Takeshi NAKATANI^{1,2}, Tomohiro MATSUSHITA²,
 Yuji SAITOH¹, Masaichiro MIZUMAKI², Akinari YOKOYA¹, Hitoshi TANAKA²,
 Yoshikazu MIYAHARA², Taihei SHIMADA³, Masao TAKEUCHI², Masaru TAKAO²,
 Sigeki SASAKI², Hideki AOYAGI², Tougo KUDO², Kazumichi SATO²,
 Syukui WU² and Haruo OHKUMA²

¹SPring-8/JAERI, ²SPring-8/JASRI, ³Neutron/JAERI

We report that the operation of the circular dichroism (CD) measurement system with periodic photon-helicity switching. The measurements were performed at the soft x-ray beamline -BL23SU- in SPring-8. The monochromator control system was synchronized to the movement of the magnetic row (phase shift) of an APPLE-2-type variably-polarizing undulator. The periodic phase shift of the undulator provided the photon helicity-switching of soft x-rays. The closed orbit distortion of the storage ring was controlled to avoid optical axis disturbances at the beamlines. At last, the CD spectra with photon-helicity switching method are shown.

1. はじめに

光の性質のなかで、“偏光”は一つの重要な性質であるが、放射光では波長可変性、強度などが主な特徴として捉えられ、偏光についてはあまり注目されてこなかった。しかし、ここ10年来、実験技術や手法が進み、放射光でも偏光が着目されるようになってきた。一言に偏光といっても、水平方向や垂直方向または傾いた直線偏光や、円偏光および楕円偏光、そして無偏光に分類される。円二色性については、本誌“放射光”でもすでに特集が組まれ¹⁾、優れた解説も多く出ている²⁾。その一方で、偏光した光をどのように手に入れ利用するか、評価するかという点については、まだまだ、取り組むべき課題が多い。本稿では、我

々が最近行っている位相変調を用いた高分解能円二色性実験について、そのシステムと試験実験から得られた測定スペクトルについて紹介する。

放射光施設の蓄積リング偏向電磁石から放出される光は、光軸上では水平直線偏光であるが、光軸から上下にずれた光は(楕)円偏光となる。これらの偏光成分を持った光を実験対象上に導くことによって、赤外・可視領域から硬 X 線領域にわたって様々な研究が行われている。また、SPring-8 のような第三世代光源の放射光施設では、さまざまなアンジュレータが設置されそれぞれ特徴を持った光源として活用されている。硬 X 線領域の偏光変調の例としては、SPring-8・BL39XU を挙げるができる。ア

* 日本原子力研究所 関西研究所放射光科学研究センター 〒679-5148 兵庫県佐用郡三日月町光都一丁目 SPring-8
 TEL: 0791-58-2701 FAX: 0791-58-2740 E-mail: agui@spring8.or.jp

ンジュレータビームラインのBL39XUでは、ダイヤモンド単結晶を用いたX線透過移相子によるX線の偏光変調が行われている^{3,4)}。これは光学素子の複屈折を利用した方法で、偏光変調を試料直前で高速に行うことができる。

硬X線アンジュレータビームラインで、移相子による偏光変調が大きく進歩したのに対し、軟X線は物質中での透過率が低く(吸収率が高く)、硬X線領域で利用されているような透過型光学素子の利用が難しい。多層膜などを工夫したとしても、一つの移相子が使用できるエネルギー領域が限られているため、特定のエネルギーしか利用できない。このような理由により、明るくエネルギー可変でかつ偏光変調のできる軟X線を得るためには、移相子を使用しない偏光可変アンジュレータ光源の利用が有効な手段となる。また、軟X線領域で使われる斜入射型分光器は、光源のつくる円偏光性をほとんど崩すことなく分光することができる。言い換えれば硬X線領域の直入射で使用される二結晶分光器が偏光状態を崩してしまっているのに対し、軟X線領域では光源の特質をフルに活かすことが可能であると言える。

挿入光源のうち、電子ビームをアンジュレータの中で螺旋状に運動させ(楕)円偏光を得るタイプのものはヘリカルアンジュレータと呼ばれている。SPring-8では、SPring-8型ヘリカルアンジュレータ^{5,6)}が主流になっているが、本稿ではSPring-8原研軟X線ビームラインBL23SU⁷⁻¹⁰⁾に設置されている、APPLE-2型アンジュレータ(ID23)による偏光変調の試みについて紹介する¹¹⁾。このタイプのアンジュレータは、Advanced Planar Polarized Light Emitter type-2の頭文字を取ってAPPLE-2型あるいは、S. Sasakiによって考案されたことからSasaki型と呼ばれている¹²⁻¹⁶⁾。

2. アンジュレータを用いた偏光変調

アンジュレータビームラインで左右円偏光を周期的に切り替える為には、

- ミラーとチョッパーによる切り替え
- 磁石列の機械駆動
- 電磁石アンジュレータ
- キッカー電磁石による軌道切り替え

など、いくつかの方法が考えられている。

ミラーとチョッパーにより偏光を切り替える方法では、右偏光用と左偏光用の2台のヘリカルアンジュレータの光軸がずれるようにタンデムに設置する。各々の光源からの光線を光学系(ビームラインのミラーなど)によって試料上にスポットが重なるように導くようにし、ミラーと試料の間に置かれたチョッパーで偏光を切り替える。これは偏光切り替えの際に蓄積ビーム軌道に影響を与えないのが大きな利点となるが、左右円偏光の光軸を一致させるための光学系のハンドリングが難しい。この方法による位相変調は、欧州・ESRF¹⁷⁾、ドイツ・BESSYII^{18,19)}、スイス・

SLS²⁰⁾、イタリア・ELETTLAなどの多くの研究グループで採用されている。

他にアンジュレータ内の電子ビームの軌道を変化させることにより位相変調する方法もある。通常、電子ビームの軌道の変化はアンジュレータ内だけでなく蓄積リング全体に及ぶ。放射光施設では多くのビームラインが同時に稼動しているので、位相変調が引き起こす電子ビーム軌道の変動が他のビームラインで行われている実験に支障を与えることは避けなければならない。実際、アンジュレータの設定の変更が入射時のみに限られている施設も多い。しかしながらSPring-8ではアンジュレータの上流・下流に補正電磁石(Steering Magnet: STM)を設置し、リング全体の軌道変動を最小限に押さえる工夫がされている。

磁石列の機械駆動による可変偏光アンジュレータの例として、**Fig. 1**にID23の(a)APPLE-2の磁石列の模式図と、(b)蓄積リングに設置されている様子を示す。各々の磁石列は、周期長12 cm, 周期数16からなっている。**Figure 1(a)**にある上下各2列、計4列の磁石列の互いに対角にある2組の磁石列によってビーム軸上で斜め方向の磁場をつくる。この磁石列の位相を変えることによって、任意の偏光を得ることができる。対角の磁石の組を対角線上のもう一方の組に対してビーム軸に $\lambda u/2$ ($-\lambda u/2$)動かすと円偏光の向きが反転する。アンジュレータの磁石列の機械駆動による偏光変調は、右偏光用と左偏光用のアンジュレータをタンデムに2台配置して偏光を切り替える方法に比べると、光源が一つなので分光光学系が考え易くまた任意の偏光変調が可能などの利点がある。反面、駆動時に発生する磁場の変化が引き起こす、蓄積ビーム軌道

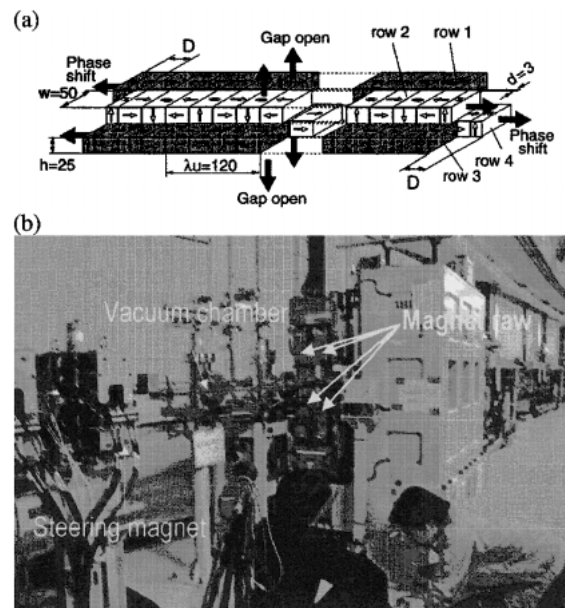


Figure 1. (a) The magnetic structure and movement of the double-array undulator. λu and D indicate the magnetic period length and the phase shift distance, respectively. (b) Photograph of ID23.

の変動 (Closed Orbit Distortion: COD) や、他のビームラインの光軸に対する影響、機械部分の劣化等が問題となる。

機械駆動に代えて、磁石列の一部を電磁石にし励磁電流を変えることによって偏光変調することも可能である²¹⁾。SPring-8でも、これを利用した電磁石アンジュレータの建設が計画されている。

2台のヘリカルアンジュレータを直線に配置し、キッカー電磁石を用いて偏光変調を行う方法では^{22,23)}、2台のアンジュレータの片方を右偏光、もう片方を左偏光になるようにセットし、電子ビームがそれぞれのアンジュレータの芯を交互に通るようにキッカー電磁石で電子軌道をコントロールして、必要な偏光が光軸上にくるようにしている。この方法は電子軌道を積極的に変化させるので、軌道変動の補正が重要となる。SPring-8・BL25SUでのツイン・ヘリカルアンジュレータシステムでは、5台のキッカー電磁石を用い超高速位相変調を目指して調整が進められており、最近、試験運転に成功している。

3. BL23SUの磁気円二色性測定システム

SPring-8・BL23SUはAPPLE-2型アンジュレータを光源とし、不等間隔平面回折格子分光器を用いた軟X線ビームラインである。ここでは表面化学、生物学、光物性、固体物理などの幅広い分野で独自の研究が進められている²⁴⁻²⁶⁾。BL23SUは日本原子力研究所の専用ビームラインであるが、そのユーザータイムのうち20%にJASRIを通じた共同利用研究が受け入れられている。

3.1 光源

一般にアンジュレータでは、上下の磁石列のギャップ距離を変えることで、基本波のピークエネルギーを変えることができる。APPLE-2型アンジュレータの場合は、磁石列のギャップ距離の動きだけでなく、位相を変えることによって任意の偏光を得ることができる。位相を変えると同時に基本波のピークエネルギーも変化する。**Figure 2**にID23の(a)円偏光モード・ギャップ距離40 mm、及び(b)水平偏光モード・ギャップ距離50 mmの基本波の計算スペクトルをそれぞれ実線で示す⁷⁾。点線は基本波のピーク強度とギャップ距離との関係である。同じギャップ距離でも偏光モードによって基本波のピーク強度が異なることが分かる。また、ギャップ距離によって円偏光を得るために必要な磁石列の位相差は異なるので、注意したい。APPLE-2型アンジュレータは任意の偏光をつくることができるが、BL23SUではビームラインの光学素子への熱負荷を考慮して現在は円偏光モードでのみ運用をしている。

ID23はアウト・バキューム型アンジュレータで、上下の磁石列の間には、電子の通り道となる真空チャンバーがある (**Fig. 1(b)**, 参照)。ID23が設置された1996年はSPring-8のコミッショニング時だったため、真空チャンバーはやや厚く、現状の最小のギャップ距離である36

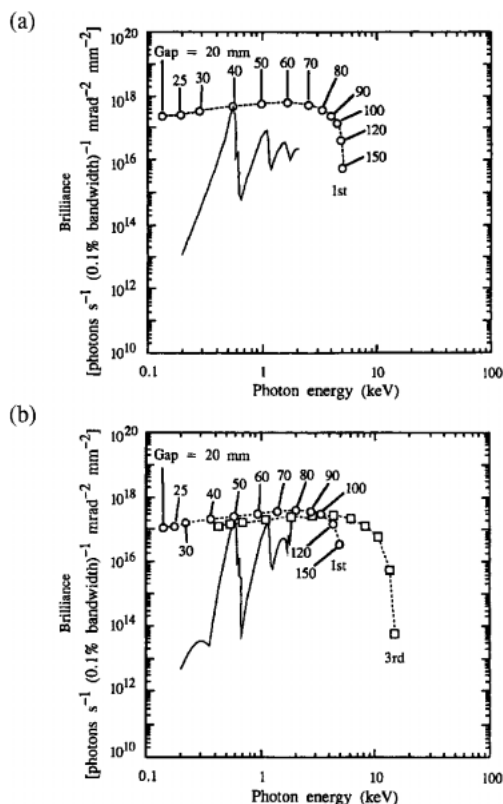


Figure 2. Brilliance of ID23 undulator radiation as a function of gap distance. (a) circular polarization mode, and (b) linear polarization mode. The solid lines indicate the spectrum when the gap distance is (a) 40 and (b) 50 mm.

mm用のものが据え付けられた。2001年1月に薄型の真空チャンバーが取り付けられ、現在はギャップ距離を25 mmまで変えられるようになっているが、実際の運用は放射線安全管理など諸般の手続きが完了した後に予定である。

ID23の磁場の変化が引き起こす軌道変動を補正するために、水平方向及び垂直方向の軌道変動を補正する補正電磁石が、アンジュレータの上流及び下流に設置されている¹⁶⁾。

3.2 分光器

ビームラインの分光器には、SPring-8の共用軟X線ビームラインBL25SU^{23,27,28)}と同型の不等間隔平面回折格子分光器が採用されており、0.5 keV~2 keV程度のエネルギー範囲をカバーしている^{9,10)}。**Figure 3**に光学素子の配置を示す。光学系は前置鏡 (Mv, Mh)、分光器 (S1-M1(M2)-VLSPG-S2)、後置鏡 (M3) からなる。前置集光の一つであるMvは、入り口スリットS1上に縦方向に放射光をサジタル集光する。出口スリットS2を通った放射光は、M3間で縦方向横方向共にコリメイトされる。

この分光器は定偏角型なので、分光する光のエネルギーを変える際に必要になる機械的な動きが少ない。回折格子

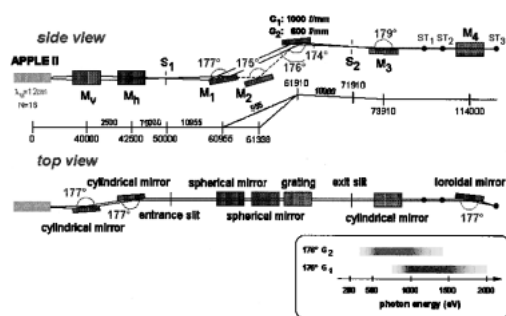


Figure 3. Outline of the varied line spacing plane grating monochromator system of BL23SU.

を傾け光線の入射角度を変えるだけで、分光された光のエネルギーを変える（波長掃引、エネルギーキャン）ことができる。BL23SUでは固体などで分光実験を行うには十分なエネルギー分解能が得られている⁹⁾。しかし、極最近では超高分解能による研究も進んできており、分光器のさらなる高精度化が必要とされるようになってきている。

3.3 制御系

BL23SUの制御系は、SPRING-8標準の制御ネットワーク体系の中にある。Figure 4に本稿でのコントロールシステムの模式図を示す。システムは、ビームライン・ワークステーション (BL-WS)、ビームライン・VME (BL-VME)、ビームライン・X末端、挿入光源・VME (ID-VME)、からなり、BL-SR-LAN及びBL-USER-LANによってネットワークを構成している⁸⁾。

このネットワーク系にユーザーPC (Fig. 4ではMCD measurement PC)を繋ぐことによって、実験者はユーザーPCから全体を意識することなしに、挿入光源、分光器、試料シグナル計測をコントロールできるようになっている。BL-WSはユーザーPCからの操作コマンド受付やID、分光器のローカル操作を行う。また、ユーザーPCを介してID-VMEによりID23のギャップ距離や位相が動かされたときには、それが誘起する磁場変動を補正し蓄積ビーム軌道が安定に保たれるように、補正電磁石に励磁電流が与えられる。測定データはユーザーPCにより GPIB を介して計測される。このシステムでは複数の制御装置が協調動作して測定が行われており、単一のPCでの測定とは異なる複雑な制御が行われている。

3.4 磁気円二色性切り替え

偏光の位相変調実験で広く行われているものに、物質の磁気的性質を調べるのに有力な磁気円二色性 (Magnetic Circular Dichroism: MCD) 測定がある。これは、吸収測定の一つで、試料に入射光に平行な磁場を与えておき、左右円偏光で得られたそれぞれの吸収スペクトルの差から、伝導帯のスピンの状態に関する情報を得るものである。

一般に行われている測定の方法としては、

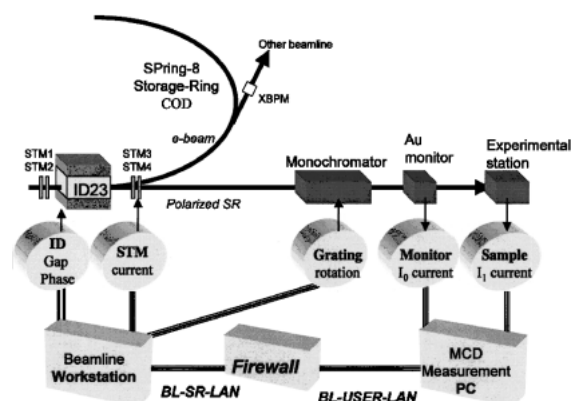


Figure 4. Schematic illustration of the MCD measurement control system at BL23SU with ID23 in SPRING-8. Experimenters can carry out the MCD measurements via the SPRING-8 networks, including BL-SR-LAN and BL-USER-LAN. VMEs and BL-X-terminals are omitted in the figure.

- 試料に入射光と平行な磁場を与えて、その磁場の向きは固定したまま、最初に、右（左）円偏光吸収スペクトルを測定し、次に、左（右）円偏光吸収スペクトルを測定し、それらの差分をとる。
- 試料に入射光と平行な磁場を与えて、最初に右（左）円偏光吸収スペクトルを測定し、偏光はそのまま、試料に与える磁場の向きを反転させ、次のスペクトルを測定し、それらの差分をとる。

というような方法がある。これらの方法は独立な吸収測定を別々に行うので、測定方法としては比較的単純という利点がある。

これらの方法の場合、最初のスペクトルを測定している間に時間が経過し、次のスペクトルを測定するまでに、蓄積電流量や試料の状態が変化して、差分をとるそれぞれのデータポイントが同じ状態で測定されたという保証はない。また特に高い分解能実験の場合、最初のスペクトルと次のスペクトルを測定している間に、分光器の機械的な再現性に問題があらわに現れれば、分光器を同じようにスキャンしていても、見かけ上のエネルギー軸がずれてしまうことが問題となる。特にエネルギー分解能 ($E/\Delta E$) が 10000 程度の高分解能分光実験では、エネルギー再現性が問題となってくる。これは、回折格子駆動の機械的精度だけでなく、リングの蓄積電流の減少などにより、光学素子やそのサポート部にかかる熱負荷が僅かに変化することによっても起こる。磁場を反転させる場合はこれに加え、試料に印加される磁場の強さや向きも精密に制御する必要がある。

偏光の切り替えが比較的高速にできれば、別の測定方法が考えられる。それは、

- 試料に入射光と平行な磁場を与えて、右（左）円偏光であるエネルギーの一つ目のデータをとる。それからエネルギーを固定したまま、偏光を反転させ二つ目の

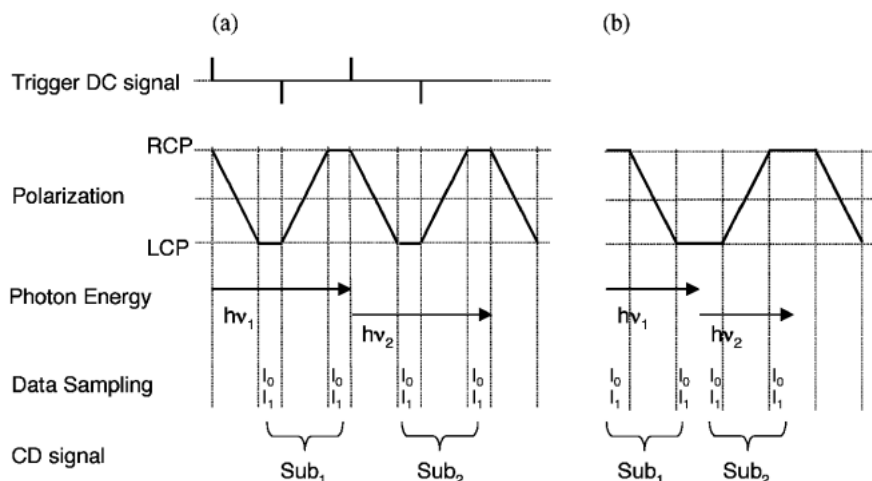


Figure 5. Examples of circular dichroism measurement cycle. RCP: right circular polarization and LCP: left circular polarization.

データをとる。そして、両者の差分をとる。それから、次のエネルギーに進み、次のデータをとる。といった操作を繰り返し左右円偏光でのデータをほぼ同時に測定しながら、差分スペクトルを得る方法である。この方法では、あるデータポイントで分光器を動かさずに左右円偏光のデータを計測することができ、分光器のバックラッシュの問題を抑えることができる。

Figure 5 に挿入光源、分光器、データ計測を同期させて行う、周期的位相変調による円二色性実験の測定手順の例を示す。ここでは、吸収スペクトルは全電子収量法で測定し (I_1)、入射強度は、M3 ミラーの全電子収量でモニター (I_0) している。ID23は偏光が切り替えられるときに矩形のトリガー信号を発生することができ、それを示しているのが Fig. 5(a) の上図である。ここでギャップ距離は測定の間は固定されている。

挿入光源、分光器、データの取り込みが独立に扱えるので、測定の手順としては多様な組み合わせが考えられる。Figure 5(a) の例では、測定エネルギーに分光器をセットして、右偏光のデータを計測し、次に左偏光に切り替えてデータを計測し各々の差分をとる。そして、次のエネルギーに進み計測を繰り返して行く。この方法では分光器の駆動と偏光切り替えが組みになり、データ計測ごとに偏光が右、左、右、左……と切り替えられるため、同じエネルギーのデータポイントではどちらかの偏光が先に測定される。これに対し、Fig. 5(b) の例ではエネルギーを変えたときに、先に計測するデータポイントの偏光を前と同じままにしておき、一つ目のデータ計測後に偏光を反転して二つ目データを計測し、差分をとり、次のエネルギーに進んで計測を繰り返していく。この方法ではデータ計測時の偏光は、右、左、左、右、右、左……となり、先に計測される偏光は交互になる。これには位相切り替えの回数を減らせる利点もある。

4. ID23の誘起する軌道変動

すでに何度も述べてきたように、アンジュレータを用いて偏光変調するときには、挿入光源の磁石列の作る磁場の変化が蓄積ビーム軌道に影響を与え、さらには、他のビームラインでの光軸に影響がでてしまう恐れがある。これに対処するため我々は ID23の位相変調と軌道変動の相関を調べ、ギャップ距離と位相に適切に対応して、補正電磁石の励磁電流が与えられるようにしている。

4.1 2次元補正テーブル

多くの挿入光源では磁石列駆動はエネルギーを変えるためのギャップ距離のみで、磁石列の作る磁場の変化が引き起こす軌道の乱れは、ギャップ距離のみに対応する。このため軌道補正のために補正電磁石の励磁量は1次元的に決められる。これに対し APPLE-2 型挿入光源の場合、磁石列の駆動はギャップ距離と位相シフトの2つの組み合わせになる。従って補正電磁石にあたる励磁電流を適切に求めるのは2次元的になり複雑になってくる。

ID23のスタディは、SPring-8 加速器運転グループの協力を受けて行われている。SPring-8 のユーザー運転中は、軌道安定化のために電子ビーム軌道のドリフトが一日に $10 \mu\text{m}$ 以下になるように、数十秒間隔で自動的に軌道補正が掛けられている。この自動補正はスタディの際には停止させた。SPring-8 の蓄積リングにはビーム軌道をモニターするためにリング全周に渡り、280個にもおよぶ多数の rf Beam Position Monitor (rf-BPM) が設置されており、そのデータは SPring-8 中央制御室に集められる。

これらの BPM で観測される軌道変動が小さくなるように、ID23の補正電磁石の励磁量をいくつかのギャップ距離及び位相位置で決め、その間を補間して挿入光源の駆動範囲全部をカバーするように2次元の補正テーブルを作成した。どのように補正電磁石を用いて軌道を安定化させ

ていくかという手順についてはここでは詳細に触れず、ID23の位相変調と軌道変動の関係を測定した例を紹介する。

4.2 補正後の光軸変動

補正励磁量を決めるスタディは、中央制御室から直接ID23をコントロールして行った。Figure 6(a)の太線(左軸)はギャップ距離、細線(右軸)は位相位置を示している。ギャップ距離が40 mm及び36 mmのときに位相を+40 mm~-40 mmの範囲で周期的に駆動している。+40 mmから-40 mmに3秒で駆動し、1秒間そのままの-40 mmに固定し、ついで-40 mmから+40 mmに3秒で駆動し、1秒間そのまま+40 mmに固定……、というパターンを繰り返している。

各ビームラインには、光軸の位置を測定するためにX-ray Beam Position Monitor (XBPM) が光源中心から約20 mの位置に設置されている。軌道変動の測定には、リングの閉軌道の位相進みを考慮して、ID23の誘起する軌道変動を観測し易い位置関係にあるBL11XU, BL39XU, BL47XUのXBPMを利用した。データは6秒毎に取り込んだ。Figure 6に(b)垂直、(c)水平方向のビームの位置変動を示す。縦軸は測定開始時刻での各々のビーム位置を原点としている。Figure 6からはビーム位置の時間変動は見られるものの、ID23の位相駆動との相関は見られず、蓄積リング電磁石の冷却水の温度変化などの影響に十分隠れていることが分かる。

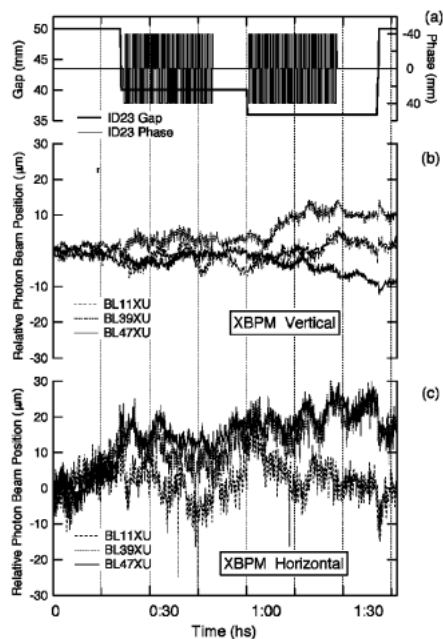


Figure 6. (a) The phase shift and gap distance of ID23. The relative photon beam positions in (b) vertical and (c) horizontal of BL11XU, BL39XU, and BL47XU during the phase and gap changing of ID23. The XBPM sampling rate was 1 point per 6 sec, while for gap and phase of ID23 sampling rate was 1 point per 6 sec.

連続した位相駆動の影響をみるために、さらにデータ取り込みを高速化した同時測定も行った。各ビームラインでの測定開始のトリガー信号には、SPring-8内で一般に使われているPHSを介した仕掛けを利用し同時測定を行った²⁹⁾。データの取り込みは1 kHz サンプリングで行った。

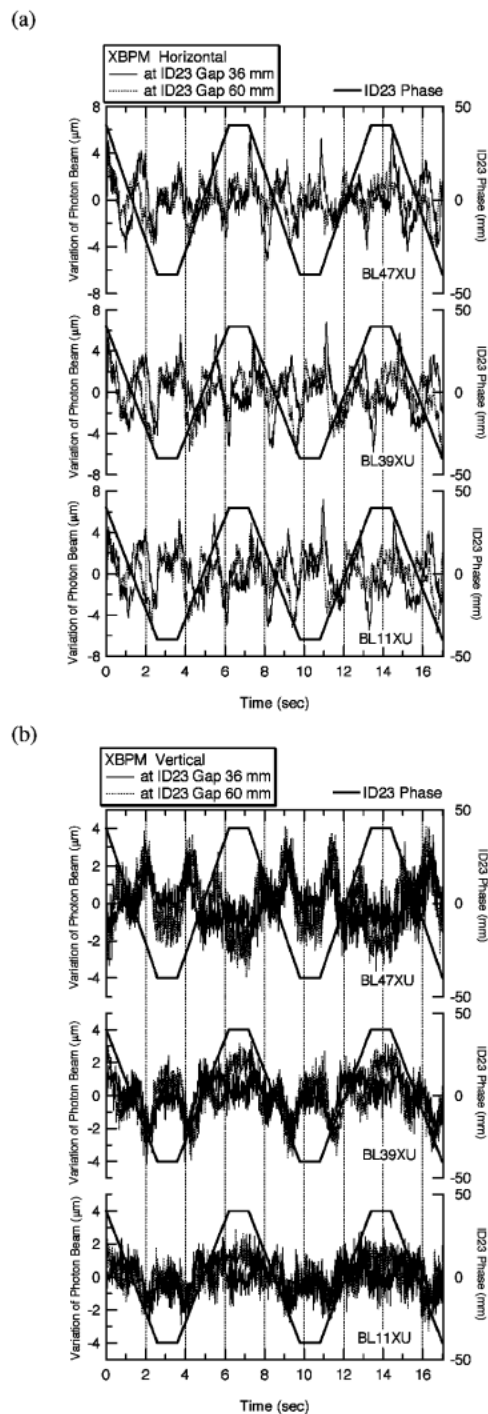


Figure 7. The variation of photon beam position in (a) horizontal and (b) vertical simultaneously observed at BL11XU, BL39XU, and BL47XU using the PHS trigger system with ID23 phase shift drive at gap distance of 36 mm and 60 mm. Sampling rate was 1 kHz. Solid lines indicate the phase position of ID23.

PHS トリガーシステムを用いることによって測定時間を ± 1 ms の精度で一致させることができる。Figure 7 に (b) 垂直方向と (c) 水平方向のビーム位置を示す。図中、太線が ID23 の位相位置 (右軸) を示している。位相の駆動パターンは先の例と同じで、ギャップ距離は 36 mm と 60 mm で測定した。ID23 の位相駆動と相関するビーム位置変動は、垂直、水平方向ともに $4 \mu\text{m}$ 以内に抑えられていることが分かった。

複数の XBPM を利用することにより ID23 に起因する軌道変動は、ギャップ駆動に対しても、位相駆動に対してもよく補正されていることが分かった。しかし、この程度のビーム変動であっても放射光実験を行っている他のビームラインで測定に影響が見られては、ユーザー運転中 (蓄積電流は 100 mA 相当) に ID23 を移動させることはできない。問題がないことを確かめるためにいくつかのビームラインでご協力いただき ID23 の位相をパターン駆動している条件下で、実験装置を使い光強度や集光への影響を測定していただいた。例えば、BL02B1, BL10XU ではイオンチャンバーを用いた光強度の計測が行なわれた。また BL25SU では実験の測定例として固体の光吸収スペクトルが測定が行なわれた。各測定者のコメントから、ID23 の位相駆動は現状では、それぞれのビームラインでの実験に悪影響を与えるものでないことが分かった。

5. 補正の高精度化

2000 年夏から、ビーム軌道変動を観測するシステムとして従来の rf-BPM とは異なる、時間応答の速いビーム位置測定システムが用いられるようになった。

この新しいシステムでみると、ID23 の位相変動がビーム軌道変動を誘起していることが、はっきりと見えるようになった。この例を Fig. 8 に示す。画面全体で 750 秒間程度のビーム軌道が表示されている。図左側では水平・垂直方向ともに大きな変動はないが、右側では水平方向に振幅がピーク・トゥ・ピークで $15 \mu\text{m}$ 程度の周期的な軌道変動が見えている。このパターンが現れたときには、BL23SU では ID23 の周期的位相駆動を用いて、円二色性変調実験を丁度始めたところであった。ID23 の位相駆動が誘起する軌道変動は、現状の加速器の運転や他のビームラインでの実験に影響を与えるものではないものの、補正電磁石の励磁量の更なる精密化など、また、改良の余地があることが分かった。

BL23SU で偏光変調実験を行うとき、位相を周期“的”に変えている。補正量を決めるスタディの際は、制御系下位から直接 ID23 をコントロールしているので正確な周期となる。しかし、ビームラインで実験しているときは、周期性は若干乱れている。この原因としては、分光器の駆動や、データの取り込みのための GPIB の通信時間などがばらつくことなどが挙げられる。また APPLE-2 型アンジュレータの場合、ギャップ距離によって円偏光をあたる

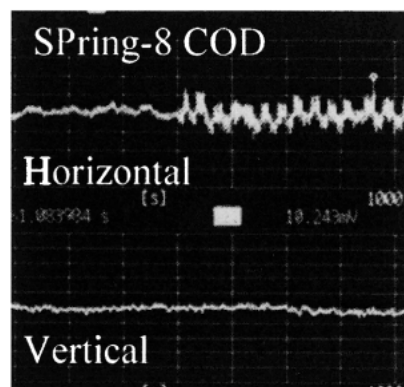


Figure 8. COD of SPring-8 while ID23 phase switching. One section of x-axis is 100 sec.

磁石列の位置が異なる。このため右円偏光位置から左円偏光位置に切り替える為の磁石列の移動量はギャップ距離によって異なる。位相駆動の際に、磁石列を動かすスピードを一定にしているため、円偏光切り替えにかかる時間は測定ごとに異なってくる。

当初、ID23 の位相駆動が引き起こす軌道変動はアンジュレータの磁石列の作る磁場だけによっていると考えられていたが、スタディを進めるうちに、位相切り替えのスピードや、向きによっても軌道変動の様子が変化することが最近分かってきた。ID23 はアウト・バキューム型で、上下の磁石列が真空チャンバーを挟んでいる。このチャンバーは非磁性 SUS で作られているが、位相駆動の際にわずかながら渦電流が発生し、これが動的な軌道変動を引き起こす原因らしいことも分かってきた。この量は磁石列駆動の速度にも依存する。現在は磁石列の駆動速度 30 mm/s を目標に、適切に軌道変動の補正ができるようにスタディを進めている。

位相駆動の際、ギャップ距離は固定している“つもり”なのだが、磁石列の磁気反発などの影響で、円偏光反転の間に $30 \mu\text{m}$ 以下のわずかなギャップ距離の変化が起こる。補正はこの量も含めて行われている。これまでのスタディを通して、他にも補正のタイミングやデータ取得制御、通信のタイミング、位相駆動用サーボモーターの電気ノイズの影響など、さまざまな問題点が明らかになり、一つ一つ改良を行っている最中である。

6. BL23SU での磁気円二色性実験スペクトル

ID23 の駆動が起因する軌道変動が現状の実用範囲では補正できていることが分かったため、アンジュレータの位相駆動を利用した、周期的位相駆動による磁気円二色性実験を試みる事が可能となった。いくつかの測定スペクトルを紹介するが、その詳しい物性的解釈は別の機会に紹介したい。

6.1 高分解能

Figure 9 に、マグネタイト (Fe_3O_4) の粉末試料に0.4 Tesla の磁場を印加して室温で測定した Fe L 吸収端スペクトルを示す。測定は Fig. 5 (b) の手順で行った。ここで XAS とは右円偏光 (RCP: 破線) と左円偏光 (LCP: 点線) で測定した吸収スペクトルの和 ($I_{\text{XAS}} = (I_{\text{RCP}} + I_{\text{LCP}}) / 2$) である。マグネタイトは典型的な強磁性体で、日常的な磁気材料であり、物性研究は古くから行われている。Fe L 吸収端スペクトルについては近年 Kuiper 等の報告がある^{30,31})。Figure 9 に示されている XAS は L_3 と L_2 端のメイン構造に若干の構造があるだけで、Kuiper 等の結果と較べても、高分解能 ($E/\Delta E \sim 7000$) で測定したメリットははっきりしない。

Figure 9 下図にその磁気円二色性 (MCD) スペクトル ($I_{\text{MCD}} = (I_{\text{RCP}} - I_{\text{LCP}}) / I_{\text{XAS}} (\%)$) を示す。下図に円で囲んで示したように、 L_3 吸収端の低エネルギー側や L_2 吸収端上に細かい構造がよく見えていることが分かる。Kuiper 等の結果と較べると圧倒的に精密で、高分解能を活かされた測定ができていていることが分かる。これは分光器の高分解能化ばかりでなく、APPLE-2 型アンジュレータの位相駆動の貢献が大きい。

この MCD スペクトルは単純には d^5 と d^6 の鉄イオンが反強磁性的に結合して、プラス側のピークとマイナス側のピークの起源になっていると考えることにより説明されてきた。しかし、今回の測定で得られた L_2 吸収端の細かな構造はこのような単純な考え方だけでは説明ができない。周期的位相駆動による高分解能の MCD 測定により、丸で囲まれたような細かな構造が新たに見つかったので、今後は精密な理論計算と合わせてこの起源を明らかにしていきたい。

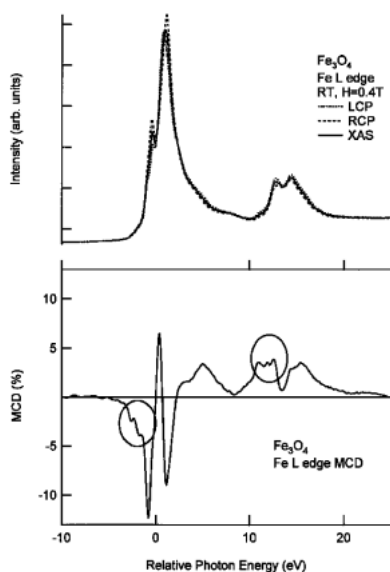


Figure 9. Fe_3O_4 Fe L edge (top) absorption and (bottom) MCD spectra at room temperature applying magnetic field of $H = 0.4$ Tesla.

6.2 エネルギー再現性

高分解能の吸収実験では、エネルギーの再現性などにも、注意を払わなければならないという例を Fig. 10 に示す。試料は希土類ガーネットの仲間の $\text{Eu}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ で、これも典型的な強磁性体であり日常的な希土類系磁気材料である³¹)。この粉末に0.4 Tesla の磁場を印加して室温で Eu M 端吸収測定を行った。

まず、Fig. 10 (a) は Fig. 9 の Fe_3O_4 の Fe L 吸収端スペクトルの測定と同じように Fig. 5 (b) の手順に沿って、周期的位相駆動を用いて測定している。 Fe_3O_4 の Fe L 吸収スペクトルに比べると、Eu M 吸収端に多重項の構造がよく現れている。この物質の Eu^{3+} の副格子の磁化は小さく、吸収スペクトルだけをみていると、右円偏光で測定したスペクトルも左円偏光で測定したスペクトルも、同じように見える。しかし、それらの差分スペクトルには明確な MCD シグナルが現れており、微細な多重項構造がはっきりと観測されている。このような小さな構造は左右円偏光の差分が正しくとれていれば信用できるものとなる。この系で Eu の形式価数は単純には 3 価で 4f 電子数は 6 個と考えられ、全角運動量 $J = 0$ で MCD シグナルは現れないことになる³²)。しかし、Fig. 10 (a) においては、微弱なが

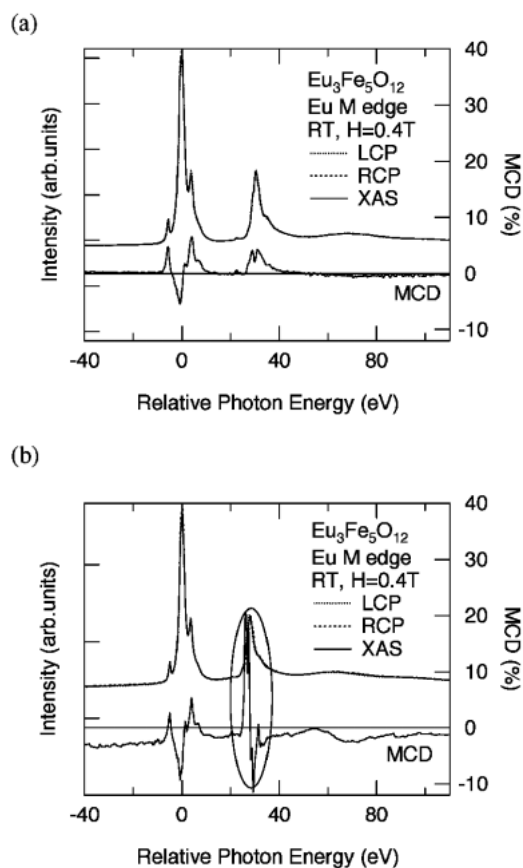


Figure 10. $\text{Eu}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ Eu M edge absorption and MCD spectra at room temperature applying magnetic field of $H = 0.4$ Tesla (a) by periodic polarization modulation mode and (b) by serial polarization modulation mode.

ら明確な MCD シグナルを観ることができる。これは Eu の J 多重項のエネルギー間隔が約 30 meV と室温程度であるため、Eu の電子配置には基底状態の J=0 のみならず、J=1 の励起状態や結晶場を考慮した状態の存在を考えなければならないことを示唆している。

Figure 10(a) に対し、Fig. 10(b) は、一般によく行われている片方の円偏光ごとにエネルギーをスキャンして測定した場合 (3.4 章の最初の ● の方法) について示したものである。M 吸収端 MCD スペクトルの様子に注目すると、M₅ 吸収端ではピークの構造だけみると同じようにも見えるが、Fig. 10(b) では M₄ 端をみると、楕円で囲んだ部分に大きなピークのようなものが現れている。MCD スペクトルは右円偏光スペクトルと左円偏光スペクトルの差スペクトルであるので、それぞれのデータポイントが計測された横軸が一致していれば、アーティファクトの少ない MCD スペクトルが得られることになる。ここで、横軸とは分光された光のエネルギーであり、分光器の回折格子の回転角度で決まるものである。回折格子の回転はパルスモーターを用いて行われているが、まれに跳びやすり又はバックラッシュが起きたりして、同じパルス数でコントロールしているつもりでも、実際の回転角度を再現していないということが起こり得る。さらにリングの蓄積電流の減少などにより、光学素子やそのサポート部にかかる熱負荷が僅かに変化することによっても分光エネルギーは再現しなくなる。このように横軸にずれがある状態で差スペクトルをとると、左 (右) 円偏光スペクトルで微分をとったような偽物のピークとなって現れてしまう。これが Fig. 10(b) の M₄ 端に現れている大きなピークの正体である。ある程度、素性の分かった試料の場合とはまったく未知の試料を測定する場合、このような偽ピークは大きな問題となる。勿論 Fig. 10(b) の例はあくまで極端な失敗例であり、測定を注意深く行えば、ある程度は回避することができる。

6.3 測定時の強度差

Figure 10(a) と (b) を比べて大きく目につく違いとして、MCD のベースラインのずれがある。これは、Fig. 10(b) の場合、最初のスペクトルを測定している時刻と次のスペクトルを測定している時刻の時間差のうちに、試料上のスポット位置などが微妙に変化してしまったためと考えられる。入射スリット及び出射スリット、回折格子の角度などがまったく同じであれば、分光された光の性質はまったく同じになるのだが、光源からの光軸や強度などが変わったりすると吸収スペクトルの素性は変わってしまう。MCD スペクトルに総和則³³⁾を適用して軌道角運動量とスピン角運動量の比を見積もる場合、本来磁化を担わない領域で、基本となる左右円偏光での吸収強度が等しく MCD ベースラインがゼロであることが重要である。

非磁性の物質での MCD スペクトルは、全領域でゼロに

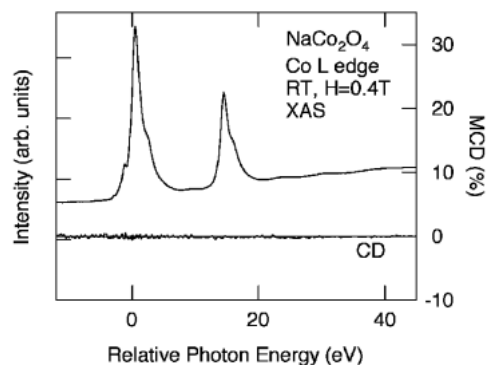


Figure 11. NaCo₂O₄ Co L edge absorption and MCD spectra at room temperature applying magnetic field of H=0.4 Tesla.

なるはずである。Figure 11 に、非磁性体の NaCo₂O₄ 粉末に 0.4 Tesla の磁場を印加して室温で測定した Co L 吸収端スペクトルを示す³⁴⁾。この物質は機能性遷移金属酸化物のうち熱電変換材料として注目されているものである。この CD スペクトルでは XAS で強度の強いところで S/N 比が悪くなる傾向が見られ、その原因はまだよく分からず検討中であるものの、CD シグナルが 1% 以内の S/N 比でベースラインが安定している。これまでに CD シグナルの S/N 比は 0.2% 近くまでは抑えることができていたが、電流測定のための機器の精度等を考えると、現状では S/N ~ 0.2% 程度が限度となっている。

このように、ベースのゼロラインが精度よく測定できれば、MCD 測定から総和則の適応の精度があがる。また、ベースラインの変動がないことから微弱な CD シグナル測定の可能性が分かる。最近では、軟 X 線領域での円二色性の測定は、生体物質などのキラリティの研究分野でも、Natural Circular Dichroism (NCD) として注目されている¹⁾。NCD の場合、CD 信号が極めて微弱であるので、ベースラインが変動することは大問題である。有機キラル分子の極微弱な NCD のこのような研究³⁵⁾にも周期的位相駆動を利用した円二色性測定が活躍することが期待される。

7. 終わりに

6 章では SPring-8・BL23SU での高速位相変調を用いた円二色性実験で高分解能かつベースラインの安定した測定が達成された例を紹介した。高分解能円二色性実験は、単に分光器のエネルギー分解能が高いだけでは実現できず、分光器のコントロールの再現性や安定性、適切な偏光変調などさまざまな要素がうまく組み合い、それらが同期することによって初めて達成される。我々は、このような点に注意しながら高分解能円二色性実験を立ち上げてきている。例えば、Fe₃O₄ の MCD スペクトルでは高分解能の達成によって、新たな微細なスペクトル構造が見つかることができた。

円二色性実験そのものは、可視領域の分光から考えれ

ば、長い歴史をもち、軟 X 線領域に限っても10年以上の歴史があり、ある意味、新しくない測定方法である。しかし、加速器、挿入光源、分光器、制御などのさまざまな分野の進歩とそれらの組み合わせにより、実験の精密性をあげることができるようになってきた。本稿で紹介した AP-PLE-2 型アンジュレータの位相変調による円二色性測定は、その一つの例である。偏光度の定量的測定や偏光変調時の偏光度の再現性など、今後明らかにすべき課題も多いが、これらを解決しながら、円二色性実験の新たな展開に貢献したい。

謝辞

放射光実験を推進する上で、実験ステーションの整備ばかりでなく、分光器、真空装置、挿入光源、蓄積リングなどの整備・連携が極めて重要です。また、それらは制御システム、ユーティリティ、インターロックなどにより有機的に繋がっています。このプロジェクトが始まった当初(今もですが)、ID23は軌道を乱す問題児としての名が高く実は、本当に稼働できるのかと思うこともありましたが、しかしながら日々多くの方々からのご尽力に恵まれ、まだ解決すべき問題は多いものの、本稿を書けるまでになりました。加速器からエンドステーションまで、SPring-8中の多くのスタッフの皆さま方からご助力をいただきました。ここに改めて感謝いたします。

参考文献

- 1) 放射光, **Vol. 13, No. 1**, pp. 3-69, (2000).
- 2) 例えば: *New directions in research with third-generation soft x-ray synchrotron radiation sources*, edited by A. S. Schlacher and F. J. Wuilleumier, Kluwer Academic Publishers, pp. 221-250 (1992); *Application of circularly polarized radiation using synchrotron and ordinary sources*, edited by F. Allen and C. Bustamante, Plenum press (1985).
- 3) M. Suzuki, N. Kawamura, M. Mizumaki, A. Urata, H. Maruhama, S. Goto and T. Ishikawa: *Jpn. J. Appl. Phys.* **37**, L1488 (1998).
- 4) M. Suzuki, N. Kawamura, M. Mizumaki, A. Urata, H. Maruhama, S. Goto and T. Ishikawa: *J. Synchrotron Rad.* **6**, 190 (1999).
- 5) T. Hara, T. Tanaka, T. Takebe, X. M. Marechal, K. Kumagai and H. Katamura: *J. Synchrotron Rad.* **3**, 276 (1998).
- 6) 北村英男: 挿入光源ハンドブック, 高輝度光科学研究センター (1996).
- 7) A. Yokoya, T. Sekiguchi, Y. Saitoh, T. Okane, T. Nakatani, T. Shimada, H. Kobayashi, M. Takao, Y. Teraoka, Y. Yahashi, S. Sasaki, Y. Miyahara and T. A. Sasaki: *J. Synchrotron Rad.* **5**, 10 (1998).
- 8) T. Nakatani, Y. Saitoh, Y. Teraoka, T. Okane and A. Yokoya: *J. Synchrotron Rad.* **5**, 536 (1998).
- 9) Y. Saitoh, Y. Teraoka, A. Agui, A. Yoshigoe and A. Yokoya: *Nucl. Instrum. Methods* (2001), to be published.
- 10) A. Yoshigoe, A. Agui, Y. Saitoh, T. Nakatani, T. Matsushita and A. Yokoya: *J. Synchrotron Rad.* **8**, 502 (2001).
- 11) A. Agui, A. Yoshigoe, T. Nakatani, T. Matsushita, Y. Saitoh, A. Yokoya, H. Tanaka, Y. Miyahara, T. Shimada, M. Takeuchi, T. Bizen, S. Sasaki, M. Takao, H. Aoyagi, T. P. Kudo, K. Satoh, S. Wu, Y. Hiramatsu and H. Ohkuma: *Rev. Sci. Instr.* **72**, 3191 (2001).
- 12) S. Sasaki: *Nucl. Instrum. Methods* **A347**, 83 (1994).
- 13) S. Sasaki, K. Miyata and T. Takada: *Jpn. J. Appl. Phys.* **31**, L1794 (1992).
- 14) S. Sasaki, K. Kakuno, T. Takada, T. Shimada, K. Yanagida and Y. Miyahara: *Nucl. Instrum. Methods*, **A331**, 763 (1993).
- 15) H. Kobayashi, S. Sasaki, T. Shimada, M. Takao, A. Yokoya and Y. Miyahara: *Proc. Eur. Accel. Conf.* **3**, 2579 (1996).
- 16) T. Bizen, T. Shimada, M. Takao, Y. Hiramatsu and Y. Miyahara: *J. Synchrotron Rad.* **5**, 465 (1998).
- 17) M. Drescher, G. Snell, U. Kleineberg, H.-J. Stock, N. Muller, U. Heinzann and N. B. Brookes: *Rev. Sci. Instrum.* **68**(5), 1939 (1997).
- 18) T. Schmidt, G. Ingold, A. Imhof, B. D. Patterson, L. Patthey, C. Quitmann, C. Schulze-Briese and R. Abela: *Nucl. Instrum. Methods* **A467-468**, 126 (2001).
- 19) M. R. Weiss, R. Follath, K. J. S. Sawhney, F. Senf, J. Bahrtdt, W. Frentrup, A. Gaupp, S. Sasaki, M. Scheer, H.-C. Mertins, D. Abramsohn, F. Schafers, W. Kuch and W. Mahler: *Nucl. Instrum. Methods* **A467-468**, 449, (2001).
- 20) R. P. Walker and B. Diviacco: *Synchrotron Rad. News*, **vol. 13**, 33 (2000).
- 21) L. Nahon, M. Corlier, P. Peaupardin, F. Mateau, O. Marcouille and C. Alcaraz: *J. Synchrotron Rad.* **5**, 428 (1998).
- 22) I.-G. Baek, J.-Y. Kim, and S.-J. Oh: *Nucl. Instrum. Methods* **A 467-468**, 545 (2001).
- 23) Y. Saitoh, T. Nakatani, T. Matsushita, T. Miyahara, M. Fujisawa, K. Soda, T. Muro, S. Ueda, H. Harada, A. Sekiyama, S. Imada, H. Daimon and S. Suga: *J. Synchrotron Rad.* **5**, 542 (1998).
- 24) Y. Teraoka and A. Yoshigoe: *Jpn. J. Appl. Phys.* **38**, Suppl. 38-1, 642, (1999).
- 25) K. Akamatsu and A. Yokoya: *J. Synchrotron Rad.* **8**, 1001, (2001).
- 26) A. Agui, Y. Saitoh, A. Yoshigoe, T. Nakatani, T. Matsushita and M. Mizumaki: *Surf. Rev. and Lett.*, to be submitted.
- 27) Y. Saitoh, H. Kimura, Y. Suzuki, T. Nakatani, T. Matsushita, T. Muro, T. Miyahara, M. Fujisawa, K. Soda, S. Ueda, H. Harada, M. Kotsugi, A. Sekiyama and S. Suga: *Rev. Sci. Instrum.* **71**, 3254 (2000).
- 28) Y. Saitoh, T. Nakatani, T. Matsushita, T. Miyahara, M. Fujisawa, K. Soda, T. Muro, S. Ueda, H. Harada, A. Sekiyama, S. Imada, H. Daimon and S. Suga: *Nucl. Instrum. Methods* (2001), to be published.
- 29) T. P. Kudo, H. Aoyagi, K. Sato, S. Wu, T. Shimada, Y. Hiramatsu, S. Sasaki, A. Yokoya, A. Agui, A. Yoshigoe, T. Ishikawa and H. Kitamura: *Nucl. Instrum Methods* **A 467-8**, 243 (2001).
- 30) P. Kuiper, B. G. Searle, L.-C. Duda, R. M. Wolf and P. J. van der Zaag: *J. Elec. Spec. & Related Phenomena*, **86**, 107 (1997).
- 31) F. Sette, C. T. Chen, Y. Ma, S. Modesti and N. V. Smith: *AIP Conf. Proc.* **No. 215**, 787 (1990).
- 32) T. Jo and S. Imada: *J. of Alloys & Compounds*, 193, 170 (1993).
- 33) P. Carra, B. T. Thole, M. Altarelli and X. Wang: *Phys. Rev. Lett.* **70**, 694 (1993).
- 34) T. Matsushita, M. Mizumaki, N. Ikeda, A. Agui, A. Yoshigoe and S. Nakamura: *Surf. Rev. and Lett.*, to be submitted.
- 35) S. Turchini, N. Zema, S. Zennaro, L. Alagna and T. Proserpi: *Surf. Rev. and Lett.*, to be submitted.