

# ツインヘリカルアンジュレータによる円偏光の高速ヘリシティ反転を用いた軟 X 線円二色性測定

室 隆桂之 財団法人高輝度光科学研究センター 〒679-5198 兵庫県佐用郡三日月町光都 1-1-1

**要旨** SPring-8 の軟 X 線ビームライン BL25SU において、ツインヘリカルアンジュレータによる円偏光の高速ヘリシティ反転の利用が始まっている。微小な信号強度の差を観測する円二色性 (CD) 測定では、左右の円偏光に対するデータ取得の時間差を出来る限り短縮することが実験精度の向上に繋がる。また、高速かつ交流のヘリシティ反転は、ロックインアンプを用いた高精度な CD 測定を可能にする。これまで観測が難しかった生体物質の自然円二色性等、微小な CD 測定への適用が期待できる。BL25SU における高速ヘリシティ反転を用いた CD 測定の性能と、利用の現状を報告する。

## 1. はじめに

放射光施設によって供給される軟 X 線円偏光の利用は、近年ますます盛んになってきた。これは、過去20年ほどの間に、円二色性 (CD) から有益な情報を得るいくつかの手法が提唱され、発達してきたことによる。代表的な例が、強磁性体における軟 X 線吸収 (XAS) の磁気円二色性 (MCD) である<sup>1)</sup>。吸収測定という比較的簡易な実験によって元素選択的に磁気モーメントの情報が得られることから、磁性研究の分野で有力な測定手段としての地位を確立しつつある。最近では、XAS-MCD を応用した磁区イメージングも注目されている<sup>2,3)</sup>。CD は磁性体以外の研究にも利用される。光電子回折の CD では、固体の原子配列を直接観測する手法が提唱された<sup>4)</sup>。つい最近では、生体物質における軟 X 線自然円二色性 (NCD) が初めて報告されている<sup>5)</sup>。

CD 実験の発展の背景には、軟 X 線円偏光を供給する挿入光源 (ヘリカルアンジュレータ) が実用化されたことがある<sup>6,7)</sup>。上述のような CD 実験には、高輝度かつ高い偏光度の円偏光が求められる。これを供給するヘリカルアンジュレータの出現は、CD 測定の発展を大きく促進した。残された課題は、円偏光のヘリシティ反転である。言うまでもなく CD 実験ではヘリシティ反転が必要であるが、実験を高輝度かつ短時間で行うためには高速でのヘリシティ反転が必要である。可視光のように偏光子が存在する領域ではヘリシティの反転は容易である。可視光用の偏光変調素子を用いてヘリシティを交流的に高速で切り換え、ロックインアンプを用いて精度良く CD を検出する手法も用いられている<sup>8)</sup>。しかし、軟 X 線領域をカバーする偏光子は現在のところ無い。よって、ヘリシティは光源側で反転させる必要がある。また、軟 X 線領域で用いられる斜入射

分光器は光の偏光度を良く保存するため、光源でのヘリシティ反転にとって都合が良い。現在、軟 X 線円偏光のヘリシティを高速で反転させる取り組みは、前述の CD 測定の隆盛とあいまって、各国の放射光施設で行われている<sup>9-11)</sup>。ここでは、SPring-8 の軟 X 線ビームライン BL25SU<sup>12-14)</sup>において最近実用化されたツインヘリカルアンジュレータ (THU) によるヘリシティ反転について、CD 測定への利用の現状を報告する。

## 2. THU による円偏光ヘリシティ反転

THU による円偏光ヘリシティ反転の方法を Fig. 1 に示す<sup>6,7,15,16)</sup>。2 台のヘリカルアンジュレータ (上流側を ID1, 下流側を ID2 とする) が電子軌道直線部に直列に置かれ、その前後および中央に 5 台の電磁石 (キッカーマグネット) が配置されている。ID1 と ID2 はそれぞれ逆の円偏光にセットされている。ここでは ID1 が右回りで ID2 が左回り円偏光とする。キッカーマグネットは、それぞれの ID 位置でバンプ軌道と呼ばれる電子軌道の折れ曲

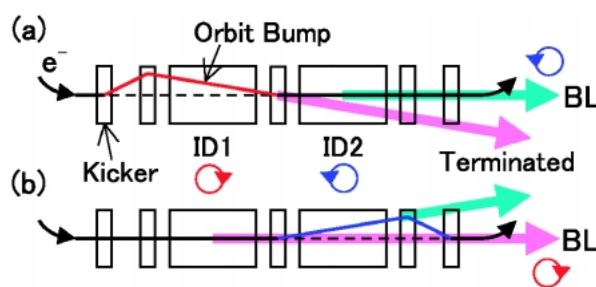


Fig. 1 Helicity switching performed by the twin helical undulators with the kicker magnets.

がりを作ることができる。ID1 でバンプ軌道ができると、ID1 からの放射はビームラインの軸から外れ、ID2 からの放射だけがビームラインにやってくる (Fig. 1a)。軸から外れた光の振り角は $200 \mu\text{rad}$ である。逆に、ID2 にバンプをつくると、ID1 の放射だけがビームラインに導かれる (Fig. 1b)。軸外への放射はビームラインの第 1 ミラーより上流にあるアブソーバーやフロントエンド (FE) スリットで吸収される。バンプ軌道の位置を ID1 と ID2 で切り換えれば、ビームラインにやってくる円偏光のヘリシティを反転することができる。

THU の利点は、ビームラインに導くべき左右の円偏光が、同じ軸上に放射される点である。BESSY 等で行われている手法は、同様に 2 台のアンジュレータを用いるが、左右円偏光をわずかに異なる方向に放射して共にビームラインに取り込み、試料上の 1 点に再び集光するものである<sup>9)</sup>。円偏光の切り替えは、バンプ軌道の切り替えではなく、ビームラインの途中に置かれたチョッパーによって行うので、容易に反転速度を上げることができる。しかし、2 つの異なる光軸を扱うため、光学素子の調整が複雑化する。THU の手法では、電子軌道への影響から反転速度の制限はあるが、扱う光軸は 1 つである。よって、ID1 と ID2 で発光点から分光器までの距離が異なるという点はあるが、光学素子の調整は上記の手法より容易である。他のヘリシティ反転の手法に、APPLE II 型アンジュレータに代表される“phasing”がある<sup>11)</sup>。1 台のアンジュレータを用いて磁石列の駆動 (位相切り換え) によってヘリシティを反転する手法である。この場合、ヘリシティを反転しても発光点が変わらないというメリットがある。だが、phasing による電子軌道への影響から反転速度を上げるのが難しい。例えば、SPring-8 BL23SU で達成された反転周波数は $0.1 \text{ Hz}$ である<sup>11)</sup>。THU では phasing より高速の切り替えが可能である。

BL25SU における現在の運転では、ヘリシティ反転は一定周波数で連続的に行われる。ヘリシティ反転に関してユーザが行う操作は「開始」と「終了」の 2 つである。「開始」から「終了」までの間、光源側ではビームライン側とは独立にヘリシティの交流反転を続ける。反転周波数は、現在のところ $1 \text{ Hz}$ と $10 \text{ Hz}$ が選択できる。 $1 \text{ Hz}$ 運転でのバンプ軌道の励起波形は、Fig. 2 の上に示すような台形波である<sup>15)</sup>。例えば、ID1 で on (バンプ励起)、ID2 で off (バンプ非励起) の時間帯に ID2 の放射 (左回り円偏光) がビームラインに来ている。その時間は $0.3 \text{ s}$ である。バンプの切り替え時間、つまり偏光と光量に変化する時間は $0.2 \text{ s}$ である。上述の $0.3 \text{ s}$ の時間帯に同期した参照信号が、ID1, ID2 それぞれに対して光源側から実験ステーションに送信されている (Fig. 2 下)。ユーザは、これを測定のゲート信号として使い、左右それぞれの円偏光に対するデータを取得する。一方、 $10 \text{ Hz}$ 運転のバンプ波形は Fig. 3 のサイン波である<sup>16)</sup>。波形の山 (もう一方の波形が谷)

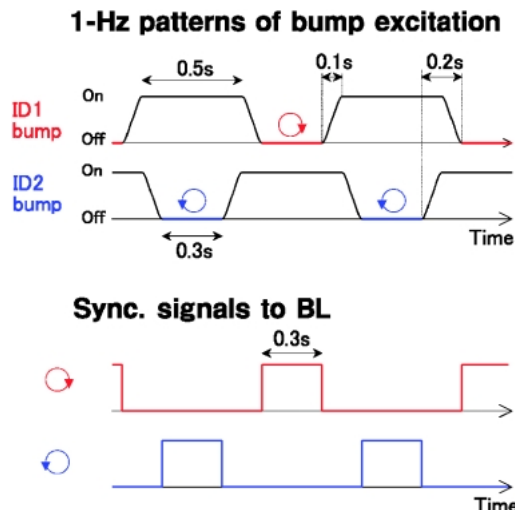


Fig. 2 Trapezoidal patterns for the 1-Hz bump excitation (upper part) and synchronizing signals for measurements (lower part).

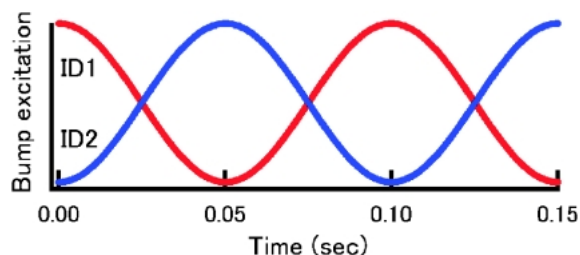


Fig. 3 Sine curves for the 10-Hz bump excitation.

のところで円偏光がビームラインに来る。ユーザが受け取る参照信号も同じサイン波である。 $10 \text{ Hz}$ 運転ではゲート積算による測定ではなく、ロックインアンプを用いた高精度検出を前提としている。これについては後で説明する。

2003年4月から $1 \text{ Hz}$ 運転でのユーザ利用を開始し、現在まで蓄積リングの電子軌道に与える大きなトラブルもなく、非常に安定した運転が行われている。現在では、BL25SU における全ユーザ課題の5割程度で $1 \text{ Hz}$ ヘリシティ反転を利用した実験が行われている。 $10 \text{ Hz}$ 運転は、2003年9月にユーザタイム中での運転が可能となった。現在まで、実験ステーション側の測定器系の調整を行ってきたが、徐々にユーザ利用を開始しつつある。本稿では、 $10 \text{ Hz}$ 運転でのテスト測定の結果も紹介する。

### 3. XAS-CD 測定

BL25SU では、XAS, 光電子顕微鏡 (PEEM), 光電子回折等の CD 測定にヘリシティ反転を用いている。ここでは、XAS の場合を例として、実際の測定器系を紹介する。

### 3.1 1 Hz 反転

1 Hz へリシティ反転を用いた XAS-CD の測定器系を Fig. 4 に示す<sup>17)</sup>。XAS 測定は光電子全収量法で行っている。

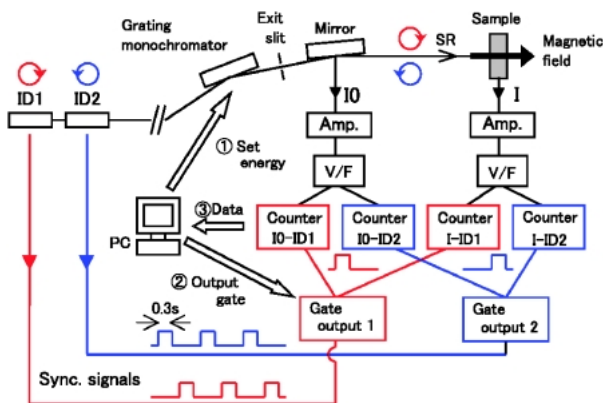


Fig. 4 A schematic diagram of the XAS-CD measurement system for the 1-Hz helicity switching.

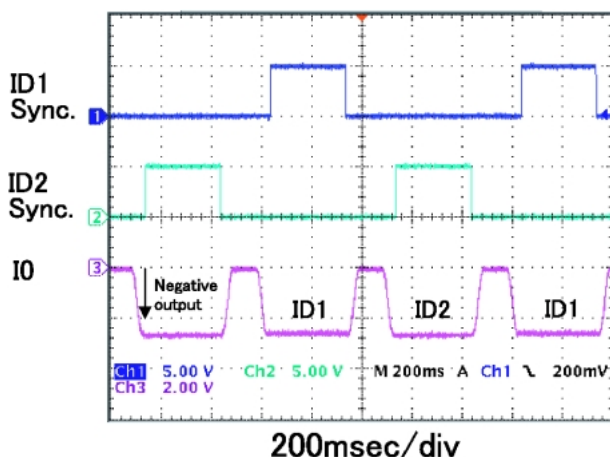
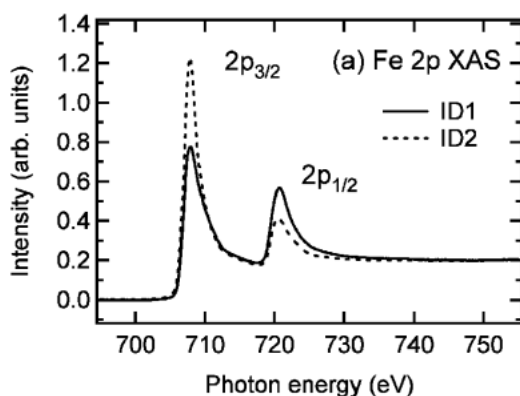


Fig. 5 Synchronizing signals and I0 signal under the 1-Hz helicity switching observed with an oscilloscope. The output voltage of the current amplifier for the I0 measurement is negative.



I0 モニターとして、ビームラインの後置鏡のドレインカレントを用いる。試料のドレインカレント (I) を後置鏡のそれ (I0) で割り算したもの (I/I0) が吸収強度となる。ID1 と ID2 のそれぞれから Fig. 2 の同期信号が送られており、これをゲートとして左右円偏光に対する吸収強度を測定する。0.3秒のゲート時間に同期して効率よくデータを積算するため、電流アンプの出力を VF 変換してカウンターで測定する方法を採用した。XAS-CD 測定は、光エネルギー設定→左右円偏光の吸収強度取得→光エネルギー設定→…の流れで進む。ヘリシティ反転は測定とは独立に続いており、ゲート信号は常に光源から送られてくる。そこで送信経路の途中で、光エネルギーの設定後だけカウンターへのゲート信号を通すアナログ回路を設けた (図中の“Gate output”)。この回路は、必要な積算時間に応じて通過するゲート信号の回数を設定できる (Fig. 4 の例では 1 回)。I, I0 のそれぞれに対して ID1 用と ID2 用のカウンターがあり、合計 4 チャンネルである。ゲート信号が送られた後、それぞれのカウンターからデータを読めば、左右円偏光に対する I, I0 の値が得られる。

Fig. 5 は、ID1, ID2 のゲート信号と後置鏡の電流アンプの出力 (注: マイナス出力) をオシロスコープで観測したものである。ID1 の光と ID2 の光が交互にビームラインに来ている様子がわかる。Fig. 6 に、Fe 金属の 2p 吸収端における XAS-MCD の測定例を示す<sup>17)</sup>。比較のため、ヘリシティ固定のまま、各エネルギー点で試料に印加する磁場 (1.4 T) の方向を反転しながら測定した結果も示す。この場合、THU のバンブ軌道の励起は行わず、ID2 のギャップを全開にして ID1 からの光だけを使っている。両者の間で MCD の強度と形状が一致しており、1 Hz へリシティ反転の状態でも円偏光度が低下していないことがわかる。測定時間は磁場反転法に比べ、1/3 程度に短縮されている。

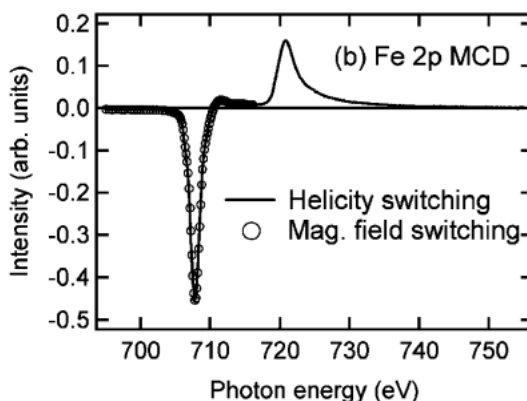


Fig. 6 (a) Fe 2p absorption spectra measured by the 1-Hz helicity switching and (b) their difference (MCD). Open circles in (b) are MCD measured by the magnetic field switching at the sample.

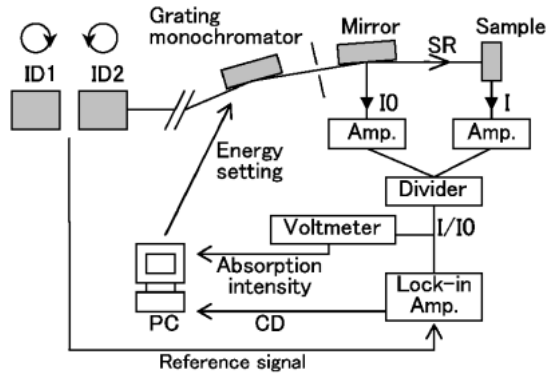


Fig. 7 A schematic diagram of the XAS-CD measurement system for the 10-Hz helicity switching.

### 3.2 10 Hz 反転

交流かつ高速でヘリシティ反転を行う目的の一つは、ロックインアンプ (LIA) を用いた高精度測定である。XAS-CD 測定では、吸収強度の1/100以下といった微小信号の観測を必要とするケースが非常に多い。LIA は狭帯域バンドパスフィルターで、微小信号の測定に有効である。信号周波数は高い方が有利であるが、ヘリシティ反転は現在のところ10 Hz が上限である。検出信号が10 Hz とすると、LIA の時定数は最低でも0.3 sec 程度は必要である。LIA の出力が安定するのに必要な時間は概ね時定数の10倍程度なので、XAS 測定の各データ点での待ち時間を約3秒と見積ると、現実的なXASの測定時間として耐えそうである。ちなみに1 Hz の場合には、待ち時間が約30秒もかかることになる。

LIA を用いた測定器系を Fig. 7 に示す<sup>18)</sup>。ヘリシティ反転の部分を除くと、SPring-8 の BL39XU における偏光変調 MCD のシステムとほぼ同様である<sup>19)</sup>。I0, I の電流アンプの出力をアナログ除算器に掛けて吸収強度に対応する I/I0 を出力し、LIA に入力する。吸収強度が CD を示す場合、円偏光の10 Hz 反転によって I/I0 の強度が10 Hz で振動する。LIA は入力信号を周波数検出して、10 Hz 成分の振幅、つまり CD 強度を出力する。一方、通常の電圧計を用いて I/I0 を長い時定数 (例えば1秒程度) で測定すると、振動する I/I0 の平均値が測定でき、これが吸収スペクトルとなる。測定の流れは、光エネルギー設定→I/I0 平均値測定、CD 強度測定→光エネルギー設定→…の順である。Fig. 8(a) (b) に Fe 金属における10 Hz 反転を用いた XAS-MCD のテスト測定の結果を示す<sup>18)</sup>。全体の測定時間は約40分である。(c) では、低エネルギー領域で、LIA を使わずに1 Hz 反転で測定した結果と比較している。10 Hz と1 Hz の測定時間はほぼ同じである。10 Hz 反転ではノイズレベルが大幅に減少しており、LIA によるノイズ除去の効果が確認できる。

10 Hz 反転での測定では、気をつけるべき点もある。まず、CD 強度を LIA で測定するため、測定結果のままでは

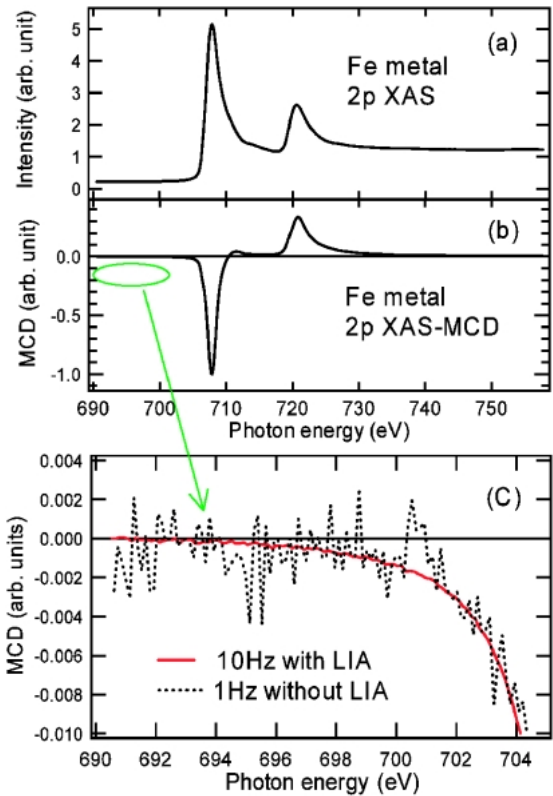


Fig. 8 (a) Averaged Fe 2p absorption spectrum measured by the digital voltmeter. (b) Corresponding MCD spectrum measured by the 10-Hz helicity switching with the LIA. (c) Comparison of noise levels between the 10-Hz and 1-Hz helicity switching. For the 1-Hz helicity switching the measurement system in Fig. 4 was used.

は吸収強度に対する CD の絶対値が曖昧である。絶対値が必要な場合には、CD 強度が良くわかっている参照試料を測定するなどして規格化する必要がある。I/I0 の割り算にも気を付ける必要がある。ID1, 2 のパンプ波形は Fig. 3 のサイン波であるが、偏光の切替りの時間で I0 の強度がゼロに近くなり、I/I0 の値が発散してしまう。Fig. 9 は参照信号 (ID1), I0 と I のアンプ出力 (注: マイナス出力)、除算器の出力 (I/I0) をオシロスコープで観測した例である。偏光の切替りのところで I0 強度が無くなり、I/I0 が発散していることがわかる。これは、I/I0 にちょうど 10 Hz の邪魔な信号がのっていることになり、LIA のフィルターで除き切れない可能性も考えられる。この対策として、発散する信号部分をマスクする回路を作成し、LIA での検出への影響をなくす工夫を行っている。ちなみに、Fig. 8 の測定はマスク回路無しで行われたものであるが、スペクトルの形状は磁場反転法で測定されたものとよく一致しており、I/I0 の発散部分による明らかな不具合は確認できない。

以上をまとめると、ある程度 CD が大きく (目安としては吸収強度の1%以上)、CD の絶対値が重要な測定には1 Hz 反転での測定が適しているだろう。一方、CD が非

常に小さく、通常の測定法では観測困難な CD スペクトルを S/N 良く観測したい場合には、10 Hz 反転による LIA 測定が威力を発揮する。目的に応じた使い分けが必要である。

### 3.3 ID ギャップの駆動

THU によるヘリシティ反転では、交流反転中でも蓄積リングの電子軌道に影響を与えることなく ID ギャップの駆動が可能である<sup>15,16</sup>。よって、XAS-CD の測定中に、各光エネルギーで常に光強度が最大になるように ID ギャップを最適化しながら測定することができる。アンジュレータ放射の強度が最大のところで円偏光度も最大値をとるため、ID ギャップを固定で測定する場合よりも CD スペクトルの精度が高まる。現状では、簡易的にスキャンの最初と最後のエネルギーで ID ギャップの最適値を求め、途中はリニアに補間してギャップスキャンを行っている。将来的にはギャップ対光強度の相関を求め、それに従ってスキャンすれば、より精度の高い測定となるだろう。ギャップスキャンは 1 Hz、10 Hz 反転共に行うことができる。

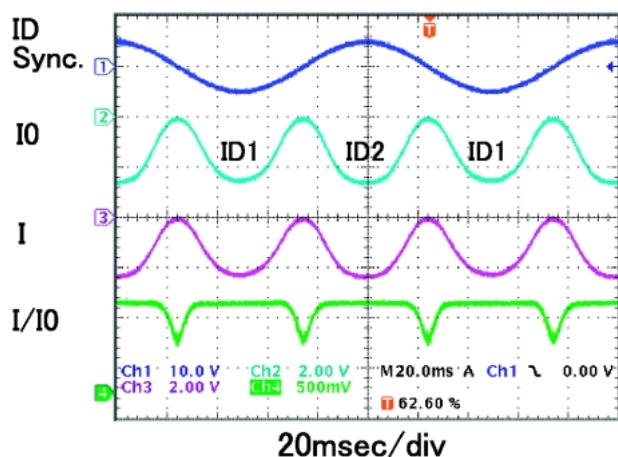


Fig. 9 Synchronizing, I0, I and I/I0 signals under the 10-Hz helicity switching observed with an oscilloscope. The output voltages of the current amplifiers for the I0 and I measurements are negative.

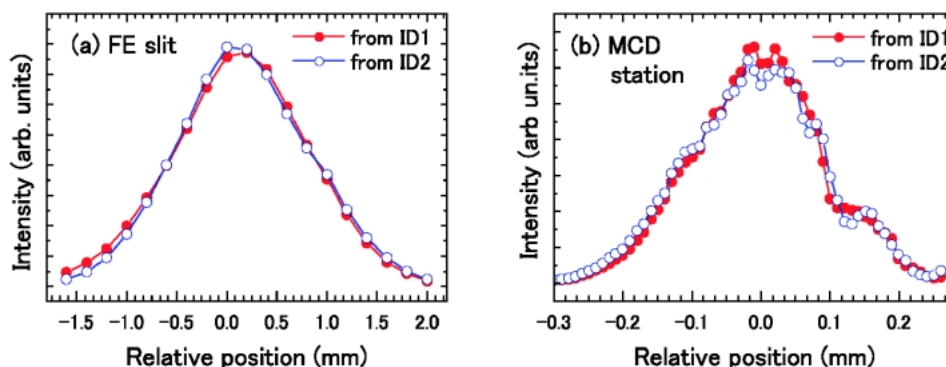


Fig. 10 Light intensity profiles along horizontal positions observed at (a) the front end slit and (b) the second experimental station.

現在、ヘリシティ反転中にギャップスキャン可能なエネルギー領域は 0.22~2 keV である。分光器のエネルギー領域もこれに対応している。

## 4. 性能評価

### 4.1 光の位置

THU によるヘリシティ反転では、ビームラインに導かれる左右円偏光の光軸は理想的には一致しているはずである。しかし、実際には何等かの要因で、ずれが発生する可能性がある。光軸にずれがあると、実験ステーションで試料上の光スポット位置にずれが発生する。試料に不均一性がある場合、光スポットのずれによって偽の CD が発生し、特に微小な CD を観測する場合に問題となる。

光軸の水平方向の角度に関しては、キッカーマグネットを利用して微調整することが可能である。つまり、ヘリシティ反転の際、本来はバンパ軌道を励起しない（ビームラインへ光を供給する）方の ID に微小なバンパを作って光の角度を振り、ID1 と ID2 の光軸の角度をそろえることができる。この方法で調整した後、1 Hz ヘリシティ反転中の ID1, ID2 の光位置を水平方向に関して測定した結果が Fig. 10 である<sup>17</sup>。(a)は前置鏡の上流にある FE スリット（光源から約 29 m）をスキャンして後置鏡のドレインカレントを測定したもので、(b)は第 2 実験ステーション（光源から約 79 m）で試料の磁化に用いる永久磁石をスキャンして光を切りながら、下流で光強度を測定したものである。(b)でプロファイルが歪なのは、主に永久磁石の形状のためと考えられる。フィッティングの結果、スポットのずれは (a)で  $\pm 20 \mu\text{m}$  以下、(b)の場合で  $\pm 3 \mu\text{m}$  以下であった。水平方向のずれに関しては、CD 実験に問題のない程度と考えている。鉛直方向のずれに関しては現在のところ未確認であるが、分光器の入口および出口スリットが光の縦方向を切る配置にあるため<sup>12</sup>、水平方向のずれに比べてスポットのずれは起こりにくいと期待される。最近、BL25SU に PEEM 装置が導入され<sup>25,26</sup>、実験ステーションでの光スポット観測が容易に行えるようになった。

縦方向の光位置に関しても、近々確認する予定である。

#### 4.2 エネルギー差

ヘリシティ反転時に左右の円偏光で光エネルギーに差がある場合にも、CDデータの質が低下する。XAS-CDの場合、CDが出ないはずの試料を測定したとしても、エネルギーに差があるとXASの微分形の差分が現れてしまう。エネルギー差に関しては、ガスのXAS測定を用いて現在調査を進めている。ガスの吸収構造のエネルギー幅は固体に比べて狭く、エネルギー差をより反映しやすい。これまでのところ、エネルギー差がFEスリットの位置と、分光器スリットの光軸方向の位置に依存することがわかってきた。これは、主にID1とID2で分光器までの距離が異なることによる効果ではないかと考えられる。

Fig. 11にFEスリット位置への依存性に関する調査結果の例を示す。ここでは、Neガスの1s内殻におけるXASスペクトルを、Fig. 4の計測システムを用いて1 Hzヘリシティ反転で測定している。分光器の分解能は $E/\Delta E \sim 8,000$ に設定されている。FEスリットは開口が $2 \times 2$  mm、光源の見込み角で $\sim 70 \mu\text{rad}$ に設定されている。これは、この光エネルギーにおける基本波の発散の半値幅程度である。Fig. 11(a)がXASスペクトルで、(b)~(d)が左右円偏光に対するXASの差分である。(b)~(d)では、FEスリット中心位置を鉛直方向に相対的に0.4 mm (14  $\mu\text{rad}$ ) ずつ移動して測定している。(b)、(d)で明らかにXASの微分形の構造が見られ、さらに(b)と(d)では符号が逆転していることがわかる。(c)では微分形の構造がノイズレベル程度に小さくなっている。これは、(b)、(d)に比べ、(c)の場合にFEスリットがより光軸中心をとらえているためと考えられる。(c)には、比較のため、XASスペクトルを故意に1 meVだけシフトして差分を取ったもの(赤の実線)を重ねている。実験データでは吸収ピークのところでノイズが大きいが、1 meV程度のエネルギーずれはあるかもしれない。データの精度を上げてさらにエネルギー差を追い込む必要がある。(b)、(d)で差分の符号が反転していることを考慮すると、エネルギーが一致する点が存在するはずである。ガスのXASスペクトルでエネルギー差を検出限界まで追い込めば、吸収構造がよりブロードな固体の測定には問題にならないであろう。今後、さらに調整を進める。

### 5. 利用実験

BL25SUで現在行われている、ヘリシティ反転を用いた測定について簡単に紹介する。

#### 5.1 XAS-MCD

従来のXAS-MCDスペクトルの測定は、円偏光のヘリシティを固定して試料に印加する磁場の方向を反転しながら

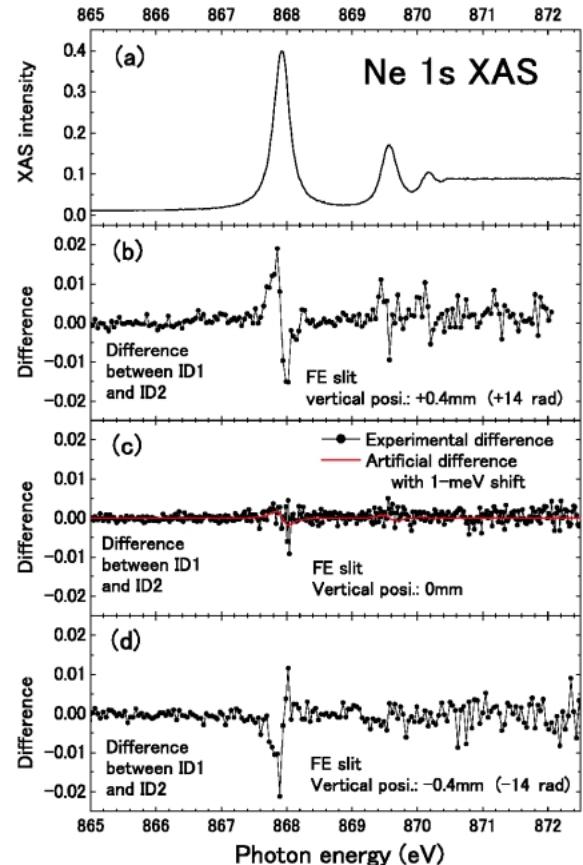


Fig. 11 Energy difference between ID1 and ID2 measured at the Ne 1s absorption edge depending on the vertical position of the FE slit.

ら行っていた。この方向は簡便であるが、磁場反転によって試料ホルダーに発生する渦電流の力で試料位置が変動してデータの質を劣化させるため、速い反転は難しい。微小なMCDを観測する場合は、装置の安定性や試料表面の時間的な劣化の影響を避けるため、短時間での測定が必要である。3.1でも述べたが、1 Hzヘリシティ反転では磁場反転法に比べ、測定時間が1/3に短縮されている。円偏光の高速反転による測定は、MCD測定の高精度化という点で効果的である。

精度の向上だけでなく、ヘリシティ反転が本質的に必要な実験もある。ここでは、ヘリシティ反転によって可能となったユーザ実験の例を紹介する。強磁性体 $\text{Sm}_{1-x}\text{Gd}_x\text{Al}_2$  ( $x=0.018$ )の磁化は、まるでフェリ磁性体のようにキュリー温度より低温側のある温度点( $T_{\text{comp}}$ )で消失してしまう<sup>20)</sup>。Adachiらは、 $\text{Sm}^{3+}$  ( $4f^5$ )ではスピン磁気モーメント( $M_s$ )と軌道磁気モーメント( $M_0$ )の大きさが拮抗するため、 $M_s$ と $M_0$ がフェリ磁性的な振る舞いを示していると考えた<sup>20)</sup>。これをQiao等は、XAS-MCDの温度依存性の測定で検証した(Fig. 12)<sup>21)</sup>。測定はすべて外部磁場を掛けない残留磁化の状態、1 Hzヘリシティ反転で行われた。特に $T=T_{\text{comp}}$ ではマクロな磁化が消失する

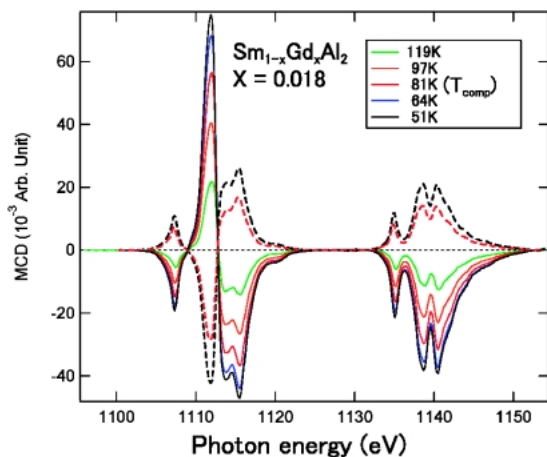


Fig. 12 MCD spectra of  $\text{Sm}_{1-x}\text{Gd}_x\text{Al}_2$  ( $x=0.018$ ) at the Sm 3d absorption edge<sup>21</sup>.

ため、磁場反転の手法は使えず、ヘリシティ反転でなければ実験できない。Fig. 12 中で、実線（破線）は  $T > T_{\text{comp}}$  ( $T < T_{\text{comp}}$ ) で磁化した後に外部磁場を除いた状態で試料温度を変化させた場合である。両者で MCD の符号が反転していることがわかる。また、 $T_{\text{comp}}$  においても MCD が観測され、マクロな磁化が消失する温度でも  $M_s$  あるいは  $M_0$  が長距離秩序を持つことがわかる。理論計算との比較から  $T < T_{\text{comp}}$  では  $M_0$  が、 $T > T_{\text{comp}}$  では  $M_s$  がマクロな磁化を担うことが判明した。この様に、残留磁化で測定する必要がある場合には、ヘリシティ反転法が不可欠である。

## 5.2 元素選択磁化測定

高速ヘリシティ反転は、XAS-MCD を利用した元素選択磁化測定にも必要である。この手法では、ある元素の吸収端で MCD 強度の外部磁場に対するヒステリシスを測定する。MCD は磁化の大きさに比例し、かつ、吸収端は元素固有であるため、その結果は元素選択的な磁化曲線とみなせる<sup>22</sup>。化合物磁性体や磁性多層膜の研究にとって有力な測定法である。ヒステリシス測定では、磁場を連続的に走査する一筆書きの測定が必要であり、各データ点で磁場を反転して MCD を測定することができない。よって、円偏光のヘリシティを反転して MCD を測定する必要がある。BL25SU では、最大磁場 1.9 T の電磁石とヘリシティ反転を組み合わせて元素選択磁化測定を行っている<sup>23</sup>。Fig. 13 に、1 Hz ヘリシティ反転で測定した準結晶  $\text{Al}_{40}\text{Mn}_{25}\text{Fe}_{15}\text{Ge}_{20}$  と近似結晶  $\text{Al}_{40}\text{Mn}_{40}\text{Ge}_{20}$  の測定例を示す<sup>24</sup>。今後、10 Hz ヘリシティ反転を用いることにより、より微小な磁化のヒステリシス曲線を精度良く測定できるようになると期待される。磁化曲線は磁性研究に携わる多くの研究者にとって馴染み深いものなので、この手法は XAS-MCD 測定の実験の無いユーザにも親しみやすいものと思われる。今後、ユーザ層の拡大が期待される。

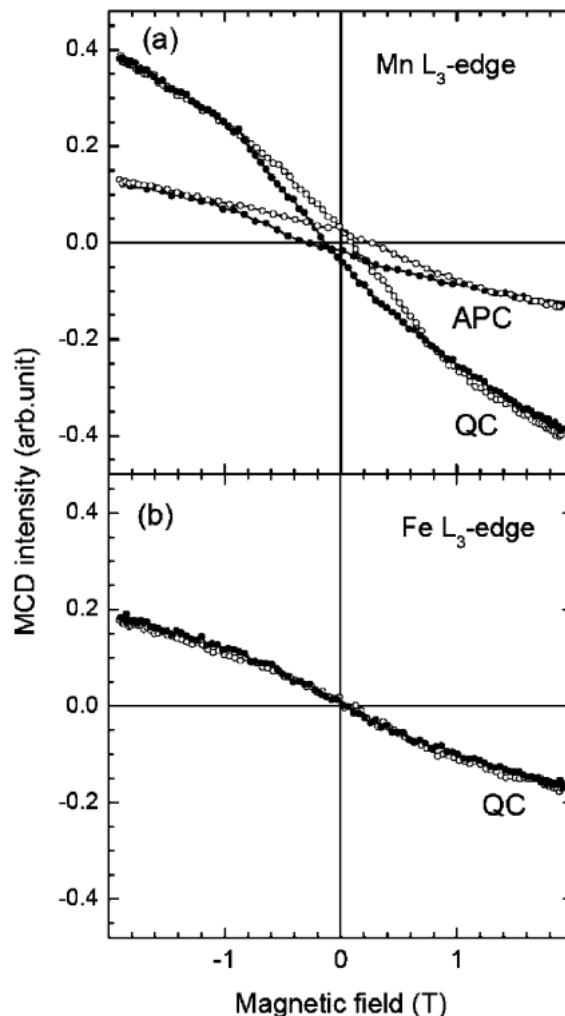


Fig. 13 Element-specific magnetization hysteresis curves of quasi-crystalline (QC)  $\text{Al}_{40}\text{Mn}_{25}\text{Fe}_{15}\text{Ge}_{20}$  and approximant-crystalline (APC)  $\text{Al}_{40}\text{Mn}_{40}\text{Ge}_{20}$ <sup>24</sup>.

## 5.3 光電子顕微鏡

XAS-MCD を光電子顕微鏡 (PEEM) と組み合わせれば、強磁性体の磁区観測が可能となる<sup>2,3</sup>。XAS-MCD では、固体表面からの二次電子放出強度に MCD に比例した差が発生する。この強度差を PEEM でイメージングし、磁性体表面の磁区構造を観測する。通常は、あるヘリシティの円偏光で一定時間（例えば数十秒）の画像の溜め込みをした後、アンジュレータの位相切り換え等でヘリシティを反転して同じ測定をし、最後に画像の差分を出す。しかし、顕微鏡測定の場合、例えば試料冷却等による試料位置のドリフトが画像の質を落とすので、左右円偏光の画像測定の時間間隔をできる限り短くしたい。よって、この場合にも高速ヘリシティ反転が有効となる。BL25SU には ELMITEC 社の PEEMSPECTOR を装備した PEEM 装置が設置されており、1 Hz ヘリシティ反転に同期した画像取得が行われている<sup>25,26</sup>。放射光を用いた測定での空間分解能は、現在のところ 100 nm 程度である。BL25SU に

おける PEEM を用いた磁区観測は始まったばかりであるが、今後の磁性材料研究への貢献に期待が持たれる。

#### 5.4 MCD 以外の CD 実験

ヘリシティ反転を利用したユニークな測定法として、Daimon 等によって行われている光電子回折を利用した立体原子顕微鏡がある。励起光に円偏光を用いると、光電子回折のピークパターンが無偏光の場合に期待される位置から回転する<sup>27)</sup>。左右の円偏光で観測した 2 枚の光電子回折画像（前方散乱ピークパターン）が、ちょうど光電子のエミッター原子から見た周りの原子の立体写真になる<sup>4)</sup>。BL25SU に設置されている二次元表示型球面鏡分析器<sup>28)</sup>を用い、1 Hz ヘリシティ反転と同期した測定が行われている。

最近、軟 X 線円偏光を用いた生体物質の XAS における NCD 観測が初めて報告され、話題を呼んだ<sup>5)</sup>。これは、SPring-8 の BL23SU において、APPLE II 型アンジュレータを用いて 0.1 Hz のヘリシティ反転で測定されたものである<sup>11)</sup>。NCD 測定では、軟 X 線照射による生体試料の損傷を最小限に抑えるため、短時間の測定が不可欠である。そのためには、高速のヘリシティ反転が必要である。また、生体物質で期待される NCD は吸収強度の 1/1000 程度という微小なものであり、10 Hz ヘリシティ反転による LIA を用いた測定が効果を発揮すると期待される。BL25SU でも XAS-NCD の測定に向けた準備を進めている。

## 6. おわりに

SPring-8 の BL25SU で行われている軟 X 線円偏光のヘリシティ反転を用いた CD 測定について、その性能と利用の現状を報告した。光スポットの縦方向の観測やエネルギー差の追い込みなど、まだまだ調整の必要な点も多いが、高速のヘリシティ反転を安定して利用することができるビームラインは世界的に見ても極めて少ない。利用実験の現場では、観測を要求される CD がますます微小化していることを痛感する。高速ヘリシティ反転を用いた CD 測定を今後ますます洗練させ、そのような要求に答えていきたい。ここで紹介した BL25SU で現行の実験以外にも、ヘリシティ反転が活用できる CD 測定が多くある。例えば、スピン分解共鳴光電子分光の CD では、反強磁性体のスピン偏極電子状態が観測できる<sup>29)</sup>。また、発光分光の MCD<sup>30)</sup>等の光検出測定は、そのバルク感性から今後の発展に期待がもたれる。今後、機会があればこのような実験にも挑戦してみたい。読者の中でも、ヘリシティ反転の利用方法にアイデアや要望のある方は是非ご提案いただきたい。現場スタッフとして、出来る限りの協力をしていきたい。

## 謝辞

ここで紹介した内容は多くの方々の成果の集約である。ツインヘリカルアンジュレータに関する部分は、北村英男氏（理研）を初めとする SPring-8 挿入光源グループの成果である。特に原徹（理研）、白澤克年（理研）の両氏はヘリシティ反転に関わる装置開発と調整が行われた。キッカーマグネットの制御系は中谷健（原研）と竹内政雄（JASRI）の両氏を中心とする SPring-8 制御グループによって整備された。斎藤祐児氏（原研）は BL25SU の建設に尽力され、本成果の基礎を築かれた。木村洋昭氏（JASRI）には各グループ間の調整に尽力頂いた。松下智裕氏（JASRI）には、XAS-CD 測定器の開発に御協力いただいた。松下氏は、PEEM や光電子回折の画像取得のソフトウェア開発も行った。中村哲也氏（JASRI）は電磁石 MCD 装置の開発を行われ、XAS-CD の調整実験に御協力頂いた。脇田高德氏（JASRI）は PEEM 装置の開発が行われた。なお、電磁石 MCD と PEEM 装置は文科省ナノテクノロジー総合支援プロジェクトによって導入されたものである。二次元光電子分光装置の整備は郭方准氏（JASRI）が尽力された。鈴木基寛氏（JASRI）には測定器に関して有益な情報を多く頂いた。工藤統吾氏（JASRI）には XAS-CD 測定に使用する電子回路を開発して頂いた。広野等子氏（JASRI）には XAS-CD の測定ソフトを開発して頂いた。小林啓介氏（JASRI）には仕事を進めるに当たっての環境整備にお力を頂いた。ビームラインでの性能評価に関して、大橋治彦氏、木下豊彦氏をはじめとする JASRI 軟 X 線関係者の方々に有意義な議論をして頂いた。広島大学の喬山、木村昭夫の両氏には  $\text{Sm}_{1-x}\text{Gd}_x\text{Al}_2$  のデータを提供して頂いた。最後に、このプロジェクトは SPring-8 利用者懇談会の固体電子物性サブグループの要望からスタートしたものであり、BL25SU 建設期に尽力された菅滋正氏（大阪大学）を初めとするサブグループメンバーの皆様に感謝申し上げる。

## 参考文献

- 1) C. T. Chen, F. Sette, Y. Ma and S. Modesti: Phys. Rev. B **42**, 7262 (1990).
- 2) J. Stöhr, Y. Wu, B. D. Hermsmeier, M. G. Samant, G. R. Harp, S. Koranda, D. Dunham and B. P. Tonner: Science **259**, 658 (1993).
- 3) W. Kuch, J. Gilles, S. S. Kang, S. Imada, S. Suga and J. Kirschner: Phys. Rev. B **62**, 3824 (2000).
- 4) H. Daimon: Phys. Rev. Lett. **86**, 2034 (2001).
- 5) M. Tanaka, K. Nakagawa, A. Agui, K. Fujii and A. Yokoya: Physica Scripta. **T115**, 873 (2005).
- 6) 原 徹: 放射光 **13**, 3 (2000).
- 7) T. Hara, T. Tanaka, T. Tanabe, X.-M. Maréchal, K. Kumagai and H. Kitamura: J. Synchrotron Rad. **5**, 426 (1998).
- 8) S. N. Jasperson and S. E. Schnatterly: Rev. Sci. Instrum. **40**, 761 (1969).
- 9) K. J. S. Sawhney, F. Senf, M. Scheer, F. Schäfers, J. Bahrddt, A. Gaupp and W. Gudat: Nucl. Instr. and Meth. A **390**, 395



- (1997).
- 10) T. Schmidt, G. Ingold, A. Imhof, B. D. Patterson, L. Patthey, C. Quitmann, C. Schulze-Briese and R. Abela: Nucl. Instr. and Meth. A **467-468**, 126 (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. Instrum. **72**, 3191 (2001).
  - 12) 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).
  - 13) 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).
  - 14) Y. Saitoh, H. Kimura, Y. Suzuki, T. Nakatani, T. Matsushita, T. Muro, T. Miyahara, M. Fujisawa, K. Soda, S. Ueda, A. Sekiyama, S. Imada and S. Suga: Nucl. Instr. and Meth. A **467-468**, 553 (2001).
  - 15) T. Hara, K. Shirasawa, M. Takeuchi, T. Seike, Y. Saitoh, T. Muro and H. Kitamura: Nucl. Instr. and Meth. A **498**, 496 (2003).
  - 16) K. Shirasawa, T. Hara, M. Takeuchi, A. Hiraya and H. Kitamura: API Conference Proceedings **705** (the conference proceedings of SRI2003), 191 (2004).
  - 17) T. Muro, Y. Saitoh, H. Kimura, T. Matsushita, T. Nakatani, M. Takeuchi, T. Hirono, T. Kudo, T. Nakamura, T. Wakita, K. Kobayashi, T. Hara, K. Shirasawa and H. Kitamura: AIP Conference Proceedings **705** (the conference proceedings of SRI2003), 1051 (2004).
  - 18) T. Muro, T. Nakamura, T. Matsushita, H. Kimura, T. Nakatani, T. Hirono, T. Kudo, K. Kobayashi, Y. Saitoh, M. Takeuchi, T. Hara, K. Shirasawa and H. Kitamura: J. Electron Spectroscopy and Related Phenomena **144-147**, 1101 (2005).
  - 19) 鈴木基寛: 放射光 **13**, 12 (2000).
  - 20) H. Adachi and H. Ino: Nature **401**, 148 (1999).
  - 21) S. Qiao, A. Kimura, H. Adachi, K. Iori, K. Miyamoto, T. Xie, H. Namatame, M. Taniguchi, A. Tanaka, T. Muro, S. Imada and S. Suga: Phys. Rev. B **70**, 134418 (2004).
  - 22) C. T. Chen, Y. U. Idzerda, H.-J. Lin, G. Meigs, A. Chaiken, G. A. Prinz and G. H. Ho: Phys. Rev. B **48**, 642 (1993).
  - 23) T. Nakamura, T. Muro, F. Z. Guo, T. Matsushita, T. Wakita, T. Hirono, Y. Takeuchi and K. Kobayashi: J. Electron Spectroscopy and Related Phenomena **144-147**, 1035 (2005).
  - 24) T. Nakamura, Y. Yokoyama, N. Kamakura, T. Matsushita, T. Hirono, T. Muro and K. Kobayashi: Nucl. Instr. and Meth. B, in print.
  - 25) F. Z. Guo, T. Wakita, H. Shimizu, T. Matsushita, T. Yasue, T. Koshikawa, E. Bauer and K. Kobayashi: J. Phys.: Condens. Matter **17**, S1363 (2005).
  - 26) 小林啓介, 郭 方准, 脇田高德, 木下豊彦: SPring-8 利用者情報 **10**, 112 (2005).
  - 27) H. Daimon, T. Nakatani, S. Imada, S. Suga, Y. Kagoshima and T. Miyahara: Jpn. J. Appl. Phys. **32**, L1480 (1993).
  - 28) M. Kotsugi, Y. Miyatake, K. Enomoto, K. Fukumoto, A. Kobayashi, T. Nakatani, Y. Saitoh, T. Matsushita, S. Imada, T. Furuhashi, S. Suga, K. Soda, M. Jinno, T. Hirano, K. Hattori and H. Daimon: Nucl. Instr. and Meth. A **467-468**, 1493 (2001).
  - 29) L. H. Tjeng, B. Sinkovic, N. B. Brookes, J. B. Goedkoop, R. Hesper, E. Pellegrin, F. M. F. de Groot, S. Altieri, S. L. Hulbert, E. Shekel and G. A. Sawatzky: Phys. Rev. Lett. **78**, 1126 (1997).
  - 30) C. F. Hague, J.-M. Mariot, P. Strange, P. J. Durham and B. L. Gyorfy: Phys. Rev. B **48**, 3560 (1993).

● 著者紹介 ●



室 隆桂之

財団法人 高輝度光科学研究センター  
利用研究促進部門

E-mail: muro@spring8.or.jp

専門: 軟 X 線分光実験

【略歴】

1999年大阪大学大学院基礎工学研究科博士課程修了, 理学博士。同年4月から高輝度光科学研究センター研究員。SPring-8 BL25SUのBL担当としてユーザ支援や装置の管理・高度化等に従事。実験手法としては磁気円二色性, 光電子分光などが専門。2001年からヘリシティ反転を用いたCD測定のための装置開発と調整に着手。CD測定の高精度化に取り組む。

## Soft x-ray circular dichroism measurements using helicity switching of helical undulator radiation by twin helical undulators

Takayuki MURO JASRI/SPring-8, 1-1-1 Kouto, Mikazuki, Sayo, Hyogo 679-5198, Japan

**Abstract** Helicity switching of helical undulator radiation has become available at a soft x-ray beamline BL25SU in SPring-8. Fast helicity switching makes it possible to detect signals of left- and right-hand circular polarization for circular dichroism (CD) measurements with a short time interval. The short-time detection is important to improve the data quality of CD measurements. Furthermore, the high-precision measurement using a lock-in amplifier is enabled by the fast helicity switching. This will be a powerful tool to detect slight CD like natural CD of biological materials. The present status of CD measurements at BL25SU is reported.