

BL08W 高エネルギー非弾性散乱

1. はじめに

高エネルギー非弾性散乱ビームライン (BL08W) は、100keV以上の放射光を常時使用できる世界的にも稀なビームラインである。SPring-8唯一のウイグラーを光源とし、直線偏光または楕円偏光した100~300 keVの高エネルギーX線を使用することができる。コンプトン散乱と磁気コンプトン散乱による基礎物性研究を主目的としており、また、高エネルギーX線を利用した特徴あるX線回折実験や、蛍光X線実験、X線CT測定、高エネルギーX線用光学素子や検出器の開発・評価実験にも利用されている。2010年度に実施された一般利用研究課題・重点産業利用課題は計32件であった。実験手法別内訳は、コンプトン散乱実験5件、磁気コンプトン散乱実験20件、X線回折実験2件、蛍光X線分析5件の実験が行われた。

2010年度は、主にコンプトン散乱実験の高信頼化・高精度化を目的とし、測定装置の多岐にわたる改良・最適化と、測定精度の検証を行った。また、高分解能コンプトン散乱測定装置用二次元X線検出器の導入を行った。

2. スピン磁気モーメント測定の高精度化

磁性体の磁気モーメントはスピン磁気モーメントと軌道磁気モーメントの両方の寄与からなり、磁性研究の上で、両者を分離し評価することは重要である。磁気コンプトン散乱測定は、その積分強度がスピンモーメントのみに依存するという特徴を持ち、スピン磁気モーメントの大きさの直接測定が可能である。磁性電子のコンプトン散乱断面積は式 (1) のように記述される。

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_2} = \frac{a_0^2}{16} \left(\frac{E_2}{E_1} \right) \left(1 + \cos^2\theta + P_L \sin^2\theta + P_C \frac{(E_1 \hat{k}_1 \cos\theta + E_2 \hat{k}_2) \cdot \sigma}{mc^2} \right) J(\sigma, p_z) \quad (1)$$

ここで、 σ は電子スピンの単位ベクトル、 P_L 、 P_C は入射X線の直線及び円偏光のストークスパラメーター、 θ は散乱角、 E_1 、 E_2 は入射及び散乱X線のエネルギー、 k_1 、 k_2 は入射及び散乱X線の波数ベクトルである。また、 $J(\)$ は電子運動量密度分布の散乱ベクトル方向への二重積分に対応するコンプトンプロファイルと呼ばれる項である。式中、 P_C を含む項より、円偏光X線のコンプトン散乱強度は対する電子スピンの向きに依存することを示していることがわかる。すなわち、磁気コンプトン散乱測定によりスピン磁気モーメントのみの磁化曲線の直接測定が可能である。本測定手法は2007A1262において確立され、また、GdAl₂、SmAl₂の測定からその有用性を示された。その後、2007B0097、2008B1643、2010B1152などの一般課題において、スピン磁気モーメントのヒステリシス測定を主目的と

した実験が行われている。しかし、磁気コンプトン散乱を利用した本手法では、その散乱断面積の小ささゆえに測定精度が十分でなく、スピン磁気モーメントの小さい試料や、薄膜試料などの微量試料の測定では、必ずしも十分な統計精度をもつ結果が得られなかったのが現状であった。

2010年度は、スピン磁気ヒステリシス測定の高精度化を主目的とし、試料-検出器の配置を変更、検出システムの最適化 (検出器パラメーターの最適化と測定シーケンスの改良)、モノクロメーター、I₀モニターの長時間安定性を向上させるための改良など、微小な、しかし多岐にわたる改良を行った。その結果、測定精度が統計誤差+20%程度に向上、測定時間は同一条件であれば約2/3に短縮された。また、Signal/Noise ratioも約4倍向上した (バルク試料において200→800)。

図1 (a) は、Ni のMCP測定時の散乱強度測定の時間変化であり、測定の長期間安定性を示したものである。試料は円柱状のニッケル単結晶 (ϕ 6 mm、厚さ2 mm) であり、印加磁場は \pm 2.5 T、一点の測定時間は60秒である。磁場を60秒ごとに+2.5 T / -2.5 Tと交互に印可しており散乱強度が変化するために、散乱強度は2本のライン状に分布している。また図1 (b) は、各2/8/32分の測定によって得られた散乱強度の変化率である。本検証により求められた現在の測定装置の計測誤差は表1の通りである。

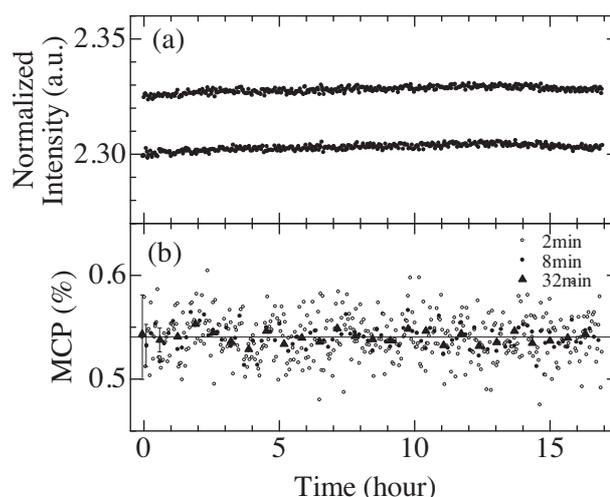


図1 (a) 磁気コンプトン散乱測定時の計測したコンプトン散乱X線強度の時間変化。試料は円柱状のニッケル単結晶 (ϕ 6 mm、厚さ2 mm)、印加磁場は \pm 2.5 T、一点の測定時間は60秒である。一点の計測ごとに磁場を+2.5 T / -2.5 Tと反転している。(b) 2/8/32分の測定によって得られた散乱強度の変化率 (%)。

表1 磁気コンプトン散乱測定時の統計変動誤差と、実際の測定誤差。測定条件は図1と同じ

測定時間 (min)	統計誤差 (%)	計測誤差 (%)
2	2.03	2.14
8	1.01	1.09
32	0.51	0.59

3. 電子運動量密度分布再構成法の誤差マップ評価法の確立
 コンプトン散乱実験（磁気コンプトン散乱実験）では、コンプトンプロファイルと呼ばれる散乱ベクトル方向に射影された電子運動量密度（スピン偏極電子運動量密度）が測定できる。2次元、3次元空間における電子運動量密度は、10本程度のコンプトンプロファイルを再構成することによって観察することができ、2/3次元電子運動量密度から軌道状態やフェルミ面をマッピングする手法が確立しつつあり、BL08Wにおけるコンプトン散乱測定的一般課題のうち約1/3が再構成を目的とするものである。再構成した2次元電子運動量密度の信頼度を示すために、実験データの統計誤差と再構成手法に推定誤差の両方を考慮した2次元誤差マップ評価法の確立が求められていた。

2010年度は、再構成した2次元電子運動量密度の信頼度を評価するために、ランダム・エラー法を応用して、2次元誤差マップを評価した。図2は、2次元物質の La_2CuO_4 の高分解能コンプトンプロファイルを[100]方位と[110]方位間の等間隔10方位に沿って測定し、その測定データから2次元電子運動量密度を再構成した際の2次元誤差マップである。誤差は原点近傍と、[100]と[110]軸上に集中している。また、今回の実験の誤差はおおよそ数パーセントになることが判明した。

今回、確立した誤差マップ評価法は、今後実施される軌道状態とフェルミ面研究の信頼性向上に役立つものと期待

され、一般課題ユーザーに提供される。

4. 高分解能コンプトン散乱測定用二次元X線検出器の導入

高分解能コンプトン散乱実験は、試料からのコンプトン散乱X線をCauchy配置のゲルマニウム湾曲単結晶を用いた波長分散法によって計測する。散乱X線を分光結晶によりエネルギー分布を角度分布に変換し、X線イメージンテンシファイアーにて検出し可視光に変換、その出力を2次元画像としてデジタルカメラで取得している。カメラの露光時間を単一のX線が作る発光ピークを画像から識別できる程度の短時間（61 msec程度）とすることで、画像に現れた単一X線による発光ピークをソフトウェアによる画像処理によって識別することでフォトン数計測を行う。実際の測定では、画像を高速（16 flams/sec）読み出しし逐次画像処理を行い、数時間程度積算することとなる。本手法では、高強度のX線測定では2個以上のX線が近接したピクセルに入射した場合に起こる数え落とし（偶発同時計数）が不可避である。この影響を最小限に抑えるためには、単一の画像取得時間を短くすればよい。

2010年度は、この問題を解決するため、より高速な画像取得装置として浜松ホトニクス社製ORCA FLASHデジタルカメラを導入した。本カメラはCMOSイメージセンサを搭載し、これまで使用していたCCDカメラ（浜松ホトニクス社製ORCA II-ER）に比べ、画素数で2倍、画像取り込みスピード7倍となっている。偶発同時計数は、入射信号強度の2乗に比例して増えるため、測定の飽和による影響はカメラにおきかえることにより1/50程度に低減され、より信頼性の高い測定が可能となることが期待される。

本機器の納入は2010年度末であったため実際の性能評価、ユーザーへの供用開始は2011年度に行われる予定である。

利用研究促進部門 構造物性IIグループ

伊藤 真義、櫻井 吉晴

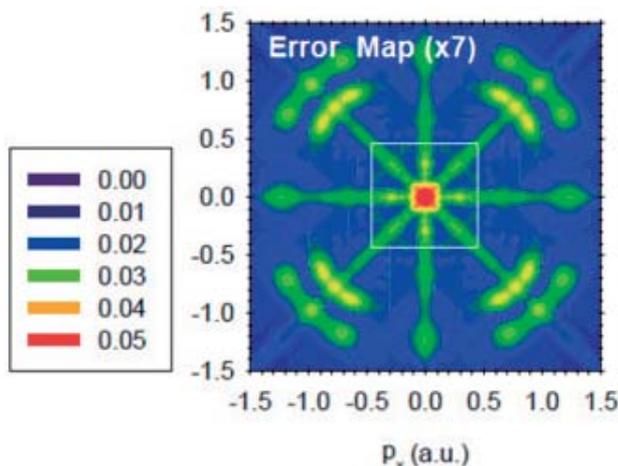


図2 2次元物質の La_2CuO_4 の高分解能コンプトンプロファイル10本（[100]方位と[110]方位間の等間隔10方位）から2次元電子運動量密度を再構成した際の2次元誤差マップ