

第2章 利用研究

2.1 先端的利用研究

2.1.1 短パルス特性を利用した時間分解測定

2.1.1.1 概要

1. 学術的意義と将来性

今後 20 年の科学技術を牽引する大型研究施設はどのようなものであろうか。2003 年の米国エネルギー省 (DOE) による報告 "Facilities for the Future of Science, A Twenty-Year Outlook" (http://www.science.doe.gov/Sub/Facilities_for_future/facilities_future.htm)において、米国内外の 28 箇所の大型研究施設の新設または更新について優先順位付けが行われた。これによれば、第 1 位、2 位にランクされた国際熱核融合実験炉計画、最速スーパーコンピュータの開発について、第 3 位に、スタンフォード大学線型加速器センターの短パルス可干渉性 X 線光源(Linac Coherent Light Source, LCLS) がランクされている。そのランク付けの理由が以下のように述べられている。

「元来 X 線は我々の骨や心臓、石油製品、爆発物や核兵器の部品 (!) にいたるまで、あらゆる物質を検査するために用いられてきた。しかし X 線にも限界がある。それは大強度・短パルス・可干渉性を持った X 線光源が存在しないために、たとえば結晶でないものの構造を決めたり、フェムト秒オーダーの速さで進行する化学反応をそのまま観察したりといった使い方に適用できないことである。」

いうまでもなく、相転移や化学反応が進行する時間スケールでの超高速ダイナミクス研究は 21 世紀の科学のフロンティアである。基礎科学としては光物性、量子エレクトロニクス、分子科学、化学、光生体機能にわたる幅広い分野にブレークスルーをもたらすと予想されており、応用としては光駆動スイッチ、光記憶素子、非線形光学素子、励起状態を制御した新物質開発などに貢献すると期待される。しかし今日までその測定手段として最も発展しているのは、良く知られているように近赤外から普通紫外領域の短パルス光を用いるものであった。1950 年頃から閃光放電管を用いた研究が始まり、ミリからマイクロ秒の現象の測定が行われた。1960 年のレーザー出現後、1962 年にはナノ秒台、1965 年にはピコ秒台、1970 年台半ばにはフェムト秒台の光パルスが実現した。21 世紀に入るやいなや紫外線領域でアト秒台のパルスの実現も報告され、測定できる反応中間体・励起状態の種類は飛躍的に増大していった。レーザーパルス実現から四半世紀の間はパルス制御が不安定であったが、現在ではこの状態は大幅に改善されており、フェムト秒台の時間分解能を持った測定が比較的簡単に行えるようになってきている。光源そのものの発展と比較すると高速現象の解析についての本質的な手法・考え方と言ったものは閃光放電管の頃から殆ど変わっておらず、励起用と検出用の 2 つの光源を用いてその 2 つの光源の間に遅延回路を入れ、励起からの遅延時間を変えて反応中間体や励起緩和状態の状態検出を行うという方法を採用している (ポンプ&プローブ時間分解分光)。これらの研究は殆どの場合励起光・検出光とも近赤外から普通紫外領域の光を利用し反応中間体・励起状態の可視吸収・発光スペクトルを得ており、価電子の励起や低エネルギー素励起を通して超高速現象を見ていることに対応する。もしこの測定方法を、より短波長の真空紫外から X 線領域に適用することが可能になれば、内殻励起分光や回折現象等を使って電子状態、電子密度分布のより直接的な情報が得られることになり、測定手法の量子的飛躍が起こるものと期待される。報告書は以下のように続けている。

「LCLS は世界初の短パルス可干渉性 X 線光源 (SASE-FEL) である。その大強度・短パルス・可干渉性を利用すれば、1 個のタンパク質複合体からの分子構造イメージングや、化学反応のリアルタイム可視化が可能となり、物質科学、生命科学分野に新たな領域を切り拓く。」

PFの将来計画としての新光源は、LCLSと同様にこれまで殆ど近赤外から普通紫外領域を使って行われて来た物質科学の動的研究を一気に真空紫外からX線領域にまで広げることができる。新光源の実現により、現在放射光を用いて行われている静的研究全てが原理的にはフェムト秒台の時間分解能を有した動的研究に踏み出す可能性を有することになる。現状の研究の流れを見る限り全ての研究領域で時分割測定が必須である訳ではないが、各研究領域での将来展開の選択肢を広げる上でフェムト秒台の時間分解能を有した動的研究の可能性を内在していることは必要不可欠である。

2. PF新光源とX線自由電子レーザー(SASE-FEL)計画との比較

PF新光源とLCLSに代表されるSASE-FEL、第2・第3世代放射光源を比較してみる。一般にある光源はそれ自身よりも低輝度・長パルス側をカバーできるので、加速器を起源とする光源としてはSASE-FELが他の放射光源を全て包含していると見ることもできなくはない。しかしながら、SASE-FELは線型加速器を光源とするために、同時供給可能なビームライン数は多くても数本程度に限定されるという難点がある。またレーザー発振時に得られるフォトン数の揺らぎが数十%を越えると試算されていること、線型加速器を用いた光源においてナノメートルオーダーでのビーム位置制御技術がまだ確立していないことを考慮すると、FELを安定したユーザー実験に供するまでにはまだ多くの研究開発を必要としており、現時点ではFELは非常に先鋭的な研究のための特殊な光源であると見なすのが妥当であろう。短パルス利用実験を推進するためには、現状で利用可能な装置技術を用いて、安定かつ定期的に利用できるサブピコ秒X線パルス光源が実現できることが重要である。そのような意味で、PF新光源は現在の放射光ユーザー全ての要求を満たし、なおかつ短波長短パルス光源として第2・第3世代放射光源の拡張型と見なすことができる。

3. 応用分野

横軸にエネルギー、縦軸に放射光パルス幅をとり、短パルス利用についてその研究分野・実験手法、実験テーマ、光源による分類を行ってみると、図2.1.1のようになる。作成者の知識不足により、図に網羅されていない分野、手法、テーマもまだ多く存在すると思われる。重要なのは、放射光がカバーするほとんどすべてのエネルギー領域において、今後、サブピコ秒の短パルス利用実験が想定されており、そのすべてが先端的なテーマであるという点である。その詳細の内容は以下の章に譲るが、この図から

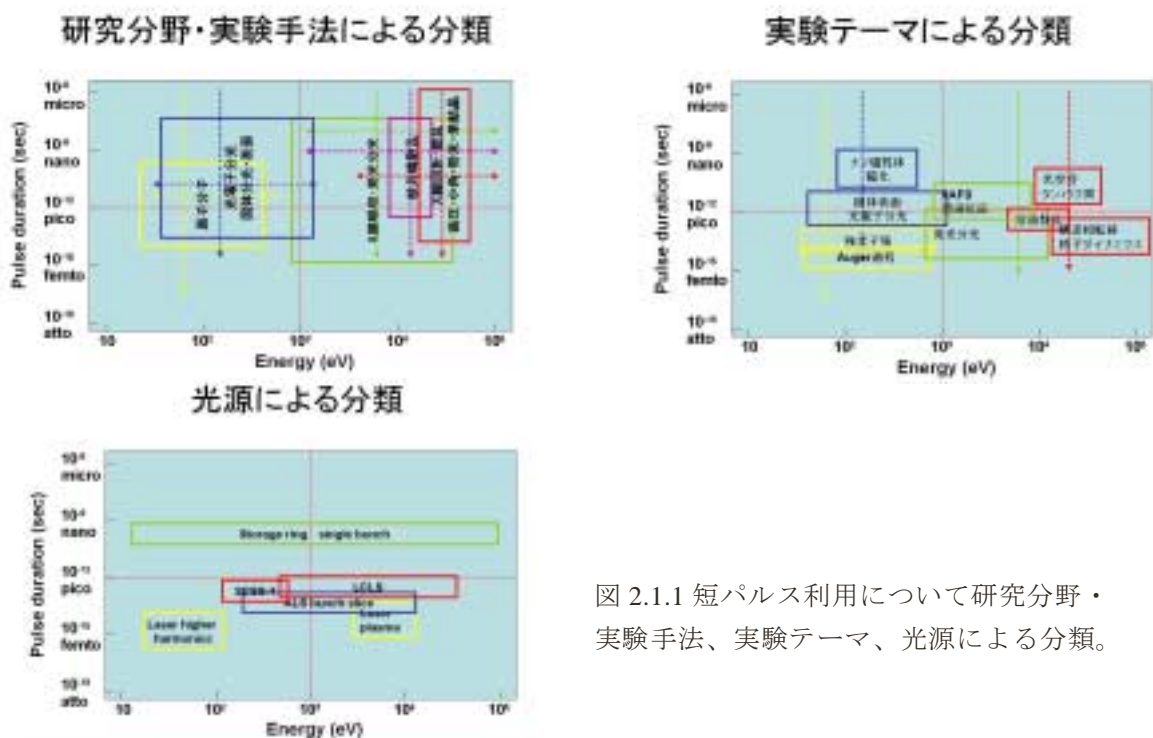


図 2.1.1 短パルス利用について研究分野・実験手法、実験テーマ、光源による分類。

読み取れるように、将来短パルス光源としては広いエネルギー領域をカバーした、多くの挿入光源を設置できるリング型光源が望ましいことを強調しておく。

サブピコ秒時分割測定ではレーザーポンプ&放射光プローブという研究が大多数を占める。高濃度の励起状態を生成できるフェムト秒レーザーとしてはモードロックチタンサファイアレーザーと再生増幅システムを組み合わせたものが最も一般的であるが、繰り返し周波数は数 kHz に制限されているのが現状であり、技術革新が進んだとしても 10 kHz オーダーが限度と考えられる。この場合、有効に利用できるのはフェムト秒レーザーと同期している放射光のみである。したがって、短パルス利用実験に適した運転モードとしては、時間分解実験用の 1 箇所の RF バケットに 1nC 程度の電子が蓄積されており、残りのバケットには均等に電子が蓄積されている運転モードが必要である。PF 新光源では蓄積リングの周回周波数が 500 kHz 程度であるので、約 1/50 の分周比でレーザーポンプ&放射光プローブ実験を行うことになる。また将来的には、より繰り返しの速いフェムト秒レーザー光源としてモードロックファイバーレーザーが検討対象になる。繰り返し周波数 1 MHz でパルス幅 1 ps 以下、パルスエネルギー 10 μJ 以上 (平均パワー > 10 W) を目標に開発が進められており、マイクロ秒以下の寿命を持つポンププローブ実験には有用となると考えられる。

また、短パルス利用実験ではレーザーと同期していない放射光パルスはノイズの原因となるので、検出器側でゲートを掛けてデータを取り込むか、あるいは高速ゲート機能を持たない検出器の場合には高速 X 線シャッターで放射光パルスを間引く必要がある。高速 X 線シャッターで放射光パルスを間引く場合、シャッターの開時間は数百ナノ秒であるので、大電流が蓄積されたバケットの前後 500 ナノ秒程度のバケットには電子が蓄積されていないことが不可欠である。

岩住俊明、間瀬一彦、柳下 明、稲田康宏、足立伸一 (KEK・PF・放射光科学)

2.1.1.2 リング型光源における超短パルス放射光の発生

蓄積リングにおける電子バンチの長さは、光子放出の際に導入される電子エネルギーの量子ゆらぎと放射減衰との平衡で決定される。通常のリングのバンチ長は標準偏差で 10–50 ps 程度である。ビーム光学系を等時的 (isochronous) にする試みもあるが、縦方向モード結合不安定性のため、数ピコ秒のバンチが達成できるのはごく低ビーム電流に限られている。バンチ長は 10 ps 程度のままで、バンチ長よりも短い放射光を取り出す手法として、1) レーザースライス法、および 2) RF 偏向法、の 2 つが有力である。

第 1 のレーザースライス法は、米国の Zholents と Zolotarev によって考案され [1]、Advanced Light Source で実証 [2] された方法である。BESSY II, SOLEIL 等でも計画されている [3,4]。模式図を図 2.1.2 に示す。

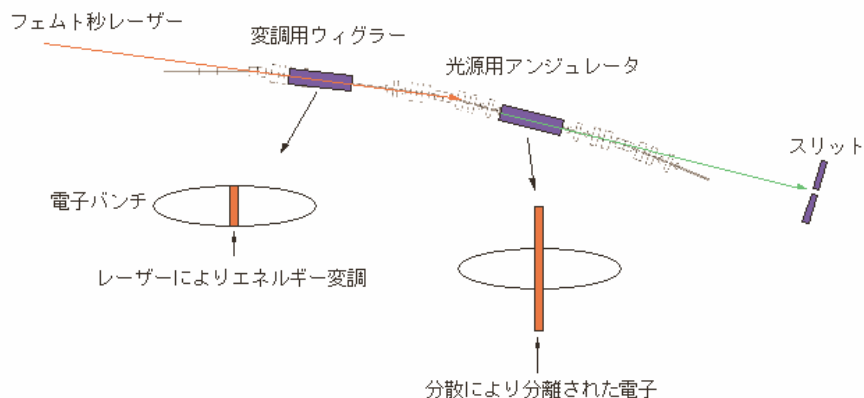


図 2.1.2 レーザー・スライス法による超短パルス放射光の発生。

リング内の隣り合う2つの直線部に1組の挿入光源を設置する。一方のウィグラー内を電子が通過するタイミングに合わせてパルス幅100フェムト秒程度の超短パルスレーザー光を導入し、電子ビームのうちレーザー光と重なり合う部分のエネルギーを変調する。パルス当たりのエネルギーが10 mJ程度のチタン・サファイアレーザーを用いれば、電子ビームの平衡エネルギー幅の数倍程度までエネルギーを変調できる。次に、電子ビームが下流のアンジュレータを通過する際に、適切に設定された分散関数によって、大きなエネルギーの電子が他の電子群から空間的に分離される。アンジュレータで発生する放射光のうち、この分離された電子からの放射光を選択することで、パルス幅100～数百フェムト秒の放射光が利用できる。

この方法の長所は、光パルスを非常に短くできることである。短所は、1)バンチ内電子のうち1～0.1%程度の電子からの放射光しか利用できないこと、2)分離された超短パルス電子群の近くに存在する主バンチからの光がバックグラウンド源になること、および3)電子ビームのエネルギーが高い場合に大出力のレーザーが必要になること（変調ウィグラーの周期が長いことと電子のエネルギー幅が大きいことによる）、の3つである。これらの得失を考えると、後述のRF偏向法では発生が難しい100～数百フェムト秒のパルス光が必要な場合にレーザーライス法が適していると考えられる。

次にRF偏向法は、米国のZholents等[5]と日本の加藤[6]によって考案された。模式図を図2.1.3に示す。超伝導の高周波空洞等を利用して電子バンチの前方と後方に反対方向のキックを与える。放射光の発光点（アンジュレータ内部）において、電子群には前後位置に相関した角度分布を持たせる。例えば、バンチ前方の電子は上向きの運動量成分を持ち、後方では下向きの運動量成分を持つ場合、これらバンチ前後から放出された光はスリットを用いて落とすことができ、バンチの中央部からの放射光だけを切り出すことができる。また、入射光位置に応じて異なる光路長を持つ光学系を開発すれば、強度を落とさず放射光パルスを圧縮することも可能である。1台目の空洞で与えられたキックは2台目で戻されるため、他の利用実験と共存することができる。

RF偏向法は今のところ実験例はないが、原理が単純であるため、必要なハードウェアができれば実現可能な方法だと考えられる。

極めて短い光パルスを得るためには、電子ビームの垂直エミッタンスが小さいことが重要である。これはリングにおける水平、垂直運動の結合係数（通常は1～0.1%程度）を可能な限り小さくすることで実現される。高周波キッカーとしては、KEKにおいてBファクトリー向けに開発が進められている超伝導クラブ空洞[7]（いわゆるクラブ衝突のための空洞）を修正して利用することなどが考えられる。

得られるパルス幅の限界は、電子ビームの垂直エミッタンス、放射光の角度発散、および偏向空洞の強さによって決定される。新蓄積リングでは極めて小さな垂直エミッタンスを実現する目標があり、標準偏差で1ピコ秒よりやや短いパルス放射光が得られる可能性が大きい。短パルス光のジッターは主に偏向用RFの位相誤差によって決定されるため、偏向空洞のRF位相は極めて高精度（時間で数百フェムト秒以下）に制御する必要がある。

この方法の短所は、超伝導空洞および関連コストが高いことである。空洞2台で大まかに3～5億円程度の費用が必要で、加えてヘリウム液化用プラント、およびその運転要員などが必要である。したがって、より低コストでこの方法を実現できる案を考えることも重要である。

RF 偏向法による超短パルス放射光の発生

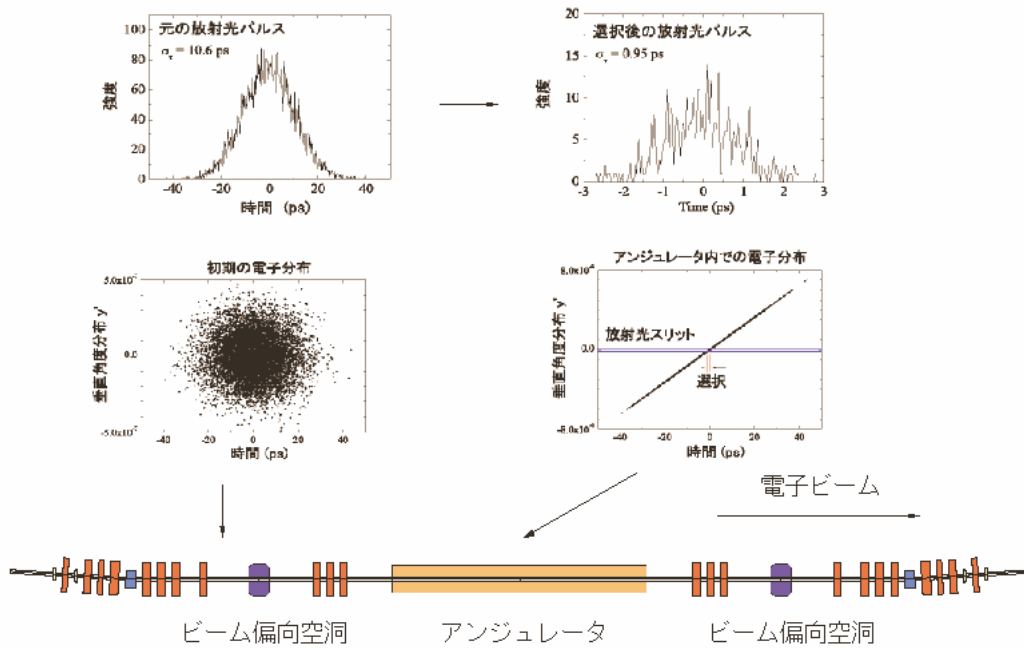


図 2.1.3 RF 偏向法による超短パルス放射光の発生原理。

参考文献

- [1] A. A. Zholents and M. S. Zolotarev: "Femtosecond X-Ray Pulses of Synchrotron Radiation", Phys. Rev. Lett. **76** (1996) 912.
- [2] R. E. Schoenlein et al., "Generation of Femtosecond Pulses of Synchrotron Radiation", Science **287** (2000) 2237.
- [3] S. Khan, H. A. Duerr, "Femtosecond synchrotron radiation pulses at BESSY II", Proc. of European Particle Accelerator Conference 2002, p. 700.
- [4] A. Nadji, et al., "Femtosecond electron beam slicing project at SOLEIL", Proc. of European Particle Accelerator Conference 2004, p. 2329.
- [5] A. Zholents, P. Heimann, M. Zolotarev, J. Byrd: "Generation of subpicosecond X-ray pulses using RF orbit deflection", Nucl. Instrum. Methods A **425** (1999) 385.
- [6] Masahiro Katoh, "Ultra-short Pulses of Synchrotron Radiation on Storage Rings", Jpn. J. Appl. Phys. **38** (1999) L547.
- [7] For example, H. Nakai et al., "Status of Superconducting RF Activities at KEK", Proc. of 10th Workshop on RF Superconductivity, 2001, Tsukuba, p. 76.

2.1.1.3 X線吸収発光分光

1. 研究の背景と目的

複雑系科学の進展にともない、非平衡状態から創発してくる多様性の起源が明らかになりつつある。物理学にとどまらず、化学、生命科学、脳科学、さらに、社会学、経済学へとその領域は広がりつつあり、われわれがこれまで抱いてきた決定論的世界観、要素還元主義的世界観の限界が明らかになってきた。光励起状態に代表される非平衡状態からの時間発展を理解するためには、量子・古典を問わず新しい確率論的記述が求められている。そこでは、軌道概念が崩壊し、分布を基礎とした新しい力学の記述を必要とする[1,2]。

非平衡状態からの緩和過程を考える場合に、最も重要な基礎概念は、“相関のダイナミクス”であり、そこでは、相互作用を通し、時間・空間の相関がどのように崩壊し、生成するのかが問題となる。[1,2] 本来、ヒルベルト空間に限定された関数空間において、力学原理から一方向的な時間の矢が現れることはないが、関数空間をリュウヴィル空間にまで拡張することにより初めて、時間対称性の破れが生じ、崩壊や散逸という概念が意味を帯びてくる。最近、Petrosky および Prigogine らは、それぞれの相関に対応する部分空間における時間発展については、力学原理から出発して、散逸的な発展方程式（運動論的方程式）が導かれることを示した[3,4]。したがって、この基本的考え方を実際の光励起状態からの緩和現象について適用してみることは、力学原理からどのように熱力学第2原理を導き出せるのかというボルツマン以来の統計力学の基本問題と関連した重要な課題である。

1960年代のレーザー光源の出現により、可視光領域においては、半導体、分子など様々な物質における光励起状態の緩和過程がフェムト秒の時間スケールで調べることが可能になり、Femto-Physics, Femto-Chemistry の分野が急速に進展している[5,6]。これらの超高速分光研究の中で、上で述べた相関のダイナミクスに関連した重要な発見は、準粒子の生成する過程がスナップショット描像として観測されたことである[7,8]。すなわち、光励起によって生じた非線形分極の時間的コヒーレンスの時間発展が4光波混合などの超高速分光法により調べられ、緩和過程における非マルコフ効果や記憶効果が直接観測されている。しかしながら、可視光波長は原子間距離や分子サイズに較べて非常に長いので、ナノスケールにおける空間的相関を観測することはできない。このことが、X線を必要とする最も重要なポイントである。すなわち、非平衡状態において初めて現れる構造（散逸構造）の起源に関係する時間的・空間的相関のダイナミクスを、X線パルスを用いることで、直接観測できると期待される。

ここでの提案は、光励起状態後の構造決定法として、特に最近注目されているレーザー励起と組み合わせた時間分解X線分光法（時間分解EXAFS法やX線回折法[9]）とは、基本的に異なるものである。すなわち、前者では、可視光励起状態の“分布”の発展を問題にするのに対し、ここで提案する新分光法は、励起状態の“コヒーレンス”の時間発展を問題にする。両者は、相補い合って、光励起状態における相関のダイナミクスに関する完全な情報を提供するものと期待される。

2. 具体例

まず、半導体中の励起状態の時間的空間的コヒーレンスを検出する新しい分光法として、可視光レーザーパルス+X線パルスの組み合わせによる和周波コヒーレント分光を提案する[10]。1次元鎖半導体中の励起子の運動を考えるために、図2.1.4(a)に示した準位構造を考える。さらに、それぞれの原子サイトに内殻準位を考え、X線周波数は、どれか特定の内殻準位に共鳴するとする。ここでは、電子と正孔の引力は強いものとする。フレンケル型励起子の準位が、散乱状態の低エネルギー側に現れる。さらに、図2.1.4(a)に仮定したエネルギー準位のサイト依存性により、フレンケル励起子のサイトエネルギーには勾配が存在する。(図2.1.4(b)参照)このような、エネルギー勾配は、光受容アンテナ系などにおいて実際に観測されている。図2.1.5には、価電子帯励起子遷移による光吸収スペクトルを示した。

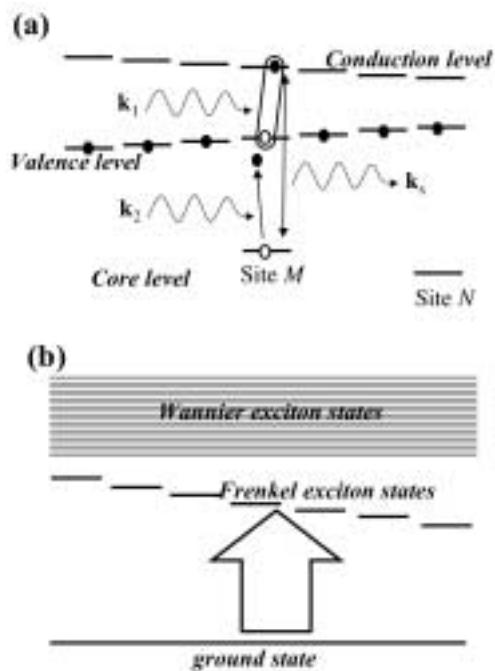


図 2.1.4 1次元分子鎖半導体のエネルギー準位。(a)可視光レーザーパルスにより励起子分極が誘起され、X線パルスで共鳴原子位置で検出される。(b) フレンケル励起子準位は、散乱状態の低エネルギー側に現れる。

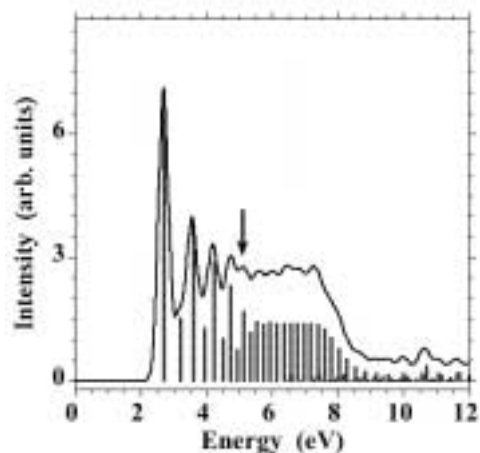


図 2.1.5 価電子帯励起子吸収スペクトル。矢印は、第1パルスの中心周波数に相当する

可視光レーザーパルスの照射によって、励起子遷移による分極が発生する。このコヒーレント分極を、原子サイト位置に対してマップしたものを図 2.1.6 に示す。対角成分は、同じサイト上での励起分極に対応し、非対角成分は、空間的コヒーレンスに相当するものである。このような、分極振動は、励起状態の電子的位相緩和時間の程度続く。今のモデルでは、位相緩和を引き起こすメカニズムが存在しない。時間遅れ (τ) をおいて、中心原子サイトの内殻準位に共鳴する X 線パルスを照射し、和周波をヘテロダイン検波する。和周波の発生は、内殻電子が共鳴的に価電子帯正孔を埋め、伝導帯電子が内殻準位に戻る過程で発生するので、コヒーレント分極振動が、中心原子位置で大きな振幅を持ったときに増大する (図 2.1.4 参照)。図 2.1.7 に、和周波スペクトルの理論計算結果を示す。横軸は、可視光レーザーパルスと X 線パルスの遅れの時間であり、縦軸は、ヘテロダイン検波された信号強度の干渉項強度を示している。 $\tau=0$ の近傍では、中心原子位置での分極振動振幅が高いことに対応して、大きな信号強度をもち、分極波束が、分子鎖の端に移動していくにつれて、強度は小さくなる。ブロッホ振動に対応して、検出される和周波信号も周期的に振動する。同じ図には、X 線周波数が端のサイトの内殻準位に共鳴した場合の和周波スペクトルも点線で示した。ちょうど、中心位置での検出と相補的になっており、分極波束の振動の様相とよく対応していることが分かる。

かくして、可視光レーザーパルスと X 線パルスを組み合わせることにより、光励起状態のコヒーレント分極振動の様子を、原子オーダーの分解能で図 2.1.6 に示したようなリアルタイムムービーが描ける。このことにより、励起状態の緩和過程において、時間的・空間的相関がどのように変化していくのが明らかになる。

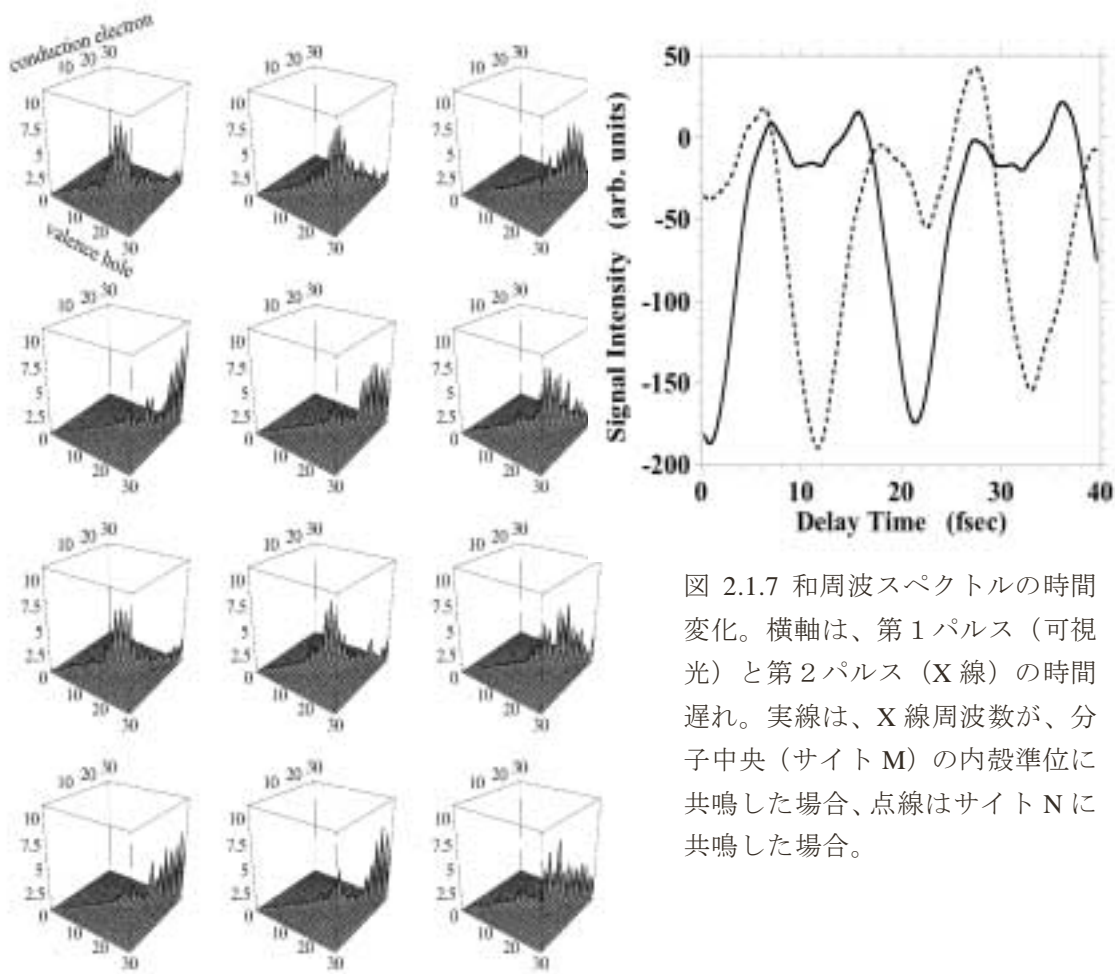


図 2.1.6 励起子分極の時間変化。第 1 パルスからの時間遅れ 40 フェムト秒までの、励起子分極の時間変化の様子。平面上 x、y の軸は、価電子正孔、伝導帯電子に対するサイトを表す。

図 2.1.7 和周波スペクトルの時間変化。横軸は、第 1 パルス（可視光）と第 2 パルス（X 線）の時間遅れ。実線は、X 線周波数が、分子中央（サイト M）の内殻準位に共鳴した場合、点線はサイト N に共鳴した場合。

さらに推し進めて、最近、筆者らは、X 線パルスの 4 光波混合分光により、局在した励起を用意し、この時間発展を原子オーダーで調べることができることを理論的に提案している。この分光法によって、励起の非局所性の違いが、その後の時間発展がどのように影響を及ぼすかを原子オーダーの空間スケールで調べることができる[11]。

ここで示したように、X 線パルスを用いた新しいコヒーレント分光法を開発していくことは、非平衡状態からどのように相関が発達し、新しい秩序が形成されていくのか、また、散逸現象と力学原理の関係を明らかにする上で、極めて重要であると考えられる。

最後に強調しておきたいのは、最近、時間分解 X 線分光に関する研究が、世界中で大いに興味を持たれ積極的に研究が進みつつあるが、ここで述べたように、“相関のダイナミクス”を明らかにするという目的意識を持って、取り組まれているものは皆無である、という点である。したがって、ここでの提案は、基本的研究動機、および、そのための検出手段の発想において全く独創的なものであるといえる。

参考文献

- [1] プリゴジン著、"確実性の終焉"、安孫子、谷口訳（みすず書房、1999）。
- [2] プリゴジン著、"存在から発展へ"、小出、安孫子訳（みすず書房、1984）。
- [3] T. Petrosky and I. Prigogine, "*Poincare resonances and the extension of classical dynamics*", *Chaos, Solitons, and Fractals* **7** (1996) 441.
- [4] T. Petrosky and I. Prigogine, "*Liouville space extension of quantum mechanics*", *Adv. Chem. Phys.* **99** (1997) 1.
- [5] "*Femtochemistry*", ed. by F. C. De Schryver, S. De Feyter, G. Schweitzer, (Wiley-VCH, 2001).
- [6] J. Shah, "*Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor nanostructures*", (Springer, 1999)
- [7] D. S. Chemla and J. Shah, "*Many-body and correlation effects in semiconductors*", *Nature* **411** (2001) 549.
- [8] A. Leitenstorfer, "*Birth of a quasiparticle*" *Nature (News and Views)* **426** (2003) 23., H. Haug "*Dressing up bare particles*", *ibid* **414** (2001) 261.
- [9] "*Time-resolved diffraction*" ed. by J. R. Helliwell and P. M. Rentzepis (Clarendon, 1999), C. Bressler and M. Chergui, "*Ultrafast x-ray absorption spectroscopy*", *Chem. Rev.* **104** (2004) 1781.
- [10] S. Tanaka and S. Mukamel, "*Simulation of optical and x-ray sum frequency generation spectroscopy of 1-dimensional molecular chain*", *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **136** (2004) 185.
- [11] S. Tanaka and S. Mukamel, "*Coherent x-ray Raman spectroscopy: A nonlinear probe for electronic excitation*", *Phys. Rev. Lett.* **89** (2002) 43001.

2.1.1.4 ナノ磁性体のサブピコ秒時間分解 XMCD

—スピンドYNAMIKSの解明とスピントロニクスへの応用—

本提案はナノスケール磁性体のスピンドYNAMIKS研究に的を絞る。20世紀後半に大発展した半導体エレクトロニクスは、本質的に電子の電荷（の移動）を利用している。そこでは、コンピューター用磁気記録媒体などを除けば、電子に固有のスピンの向きはランダムであり、電子スピンは全く利用されていない。これに対して、21世紀のエレクトロニクスは、電子固有のスピンをフルに利用したスピントロニクスへ発展すると予測されている。即ち、向きの揃った電子スピン（のアンサンブル）をひとつの量子素子として利用する。しかし、それを実現するためには多くの難問を克服しなければならない。その最大の問題はスピンのダイナミクスの解明である。これは高速高密度磁気記録・読み出しばかりでなく、スピントロニクス全体に関連する。

高密度磁気記録には、できるだけ微小な体積内に磁気モーメント（主にスピン磁気モーメント）を一方向に揃え、長時間その向きを維持する必要がある[1]（例えば磁気トンネル接合を利用したMRAM=磁気ランダムアクセスメモリー）。また高速書込み・読出しには、磁気モーメントの向きを高速で反転する

必要も生ずる。この2つは一見相反する条件である。これはメゾ／ナノスケールの磁化ダイナミックスの問題であり、マクロな M-H 曲線の時間依存性に対するマイクロな物理的起源と密接に関係する。さらにスピントロニクス全体に視野を広げれば、スピン偏極電子のスピンの向きを如何に維持して効率よく伝送できるかが問題になる（例えばスピン電界効果トランジスタ）。この場合は、各電子の超高速スピンダイナミックス、即ちスピン緩和時間を扱うことになり、非常に興味深いが困難な問題である。

これらの限定的だが重要な問題は、サブピコ秒時間幅のパルス円偏光（軟）X線放射光を利用した超高速時間分解磁気円二色性(Time-Resolved XMCD=TRXMCD)実験によってアプローチできる(図 2.1.8)。ESRF の研究者は極く最近ナノ秒時間スケールの TRXMCD 実験に成功しており[2]、原理的にはその手法を発展させればサブピコ秒の時間スケール測定も可能である。磁気トンネル接合素子やスピン電界効果トランジスタ等を含む磁性人工格子・多層膜(図 2.1.9 参照)、磁性超薄膜、磁性ナノクラスター・ナノワイヤー等のナノスケール磁性体試料を研究対象とする[1]。超短時間(ピコ～ナノ秒)パルス磁場を印加し、それに同期/遅延させた ERL あるいはスーパーストレージリングの長尺(可変偏光)アンジュレーターからのパルス(軟)X線円偏光で XMCD を検出する。光パルスの遅延時間を変化させ、XMCD の遅延時間依存性を測定することにより、スピンダイナミックスの研究が可能になる。また光パルス時間幅が非常に短い(～500 fs)から、パルス磁場の立ち上がり時間領域におけるスピンの超高速時間変化も追跡できる。このような測定は、光ビームを十分に絞れば(マイクロビーム)、磁区内の磁化の増大/減少、磁壁の移動、磁壁内のスピンの回転等の時間ドメインの直接的情報をもたらすだろう(図 2.1.10 参照)。ナノスケール磁性体は多くの場合2種類以上の磁性元素を含むが、内殻励起 XMCD は元素選択性・軌道特定性の大きな特徴を有する。従って、TRXMCD 実験により、既にフェムト秒の時間スケールに達しているレーザー利用でも得られない元素・軌道選択的なスピンダイナミックスの情報が得られる。各種のスピンダイナミックスの時間スケールは、磁区の運動が $>10^{-8}$ s、単磁区内の磁化反転が $\sim 10^{-10} - 10^{-8}$ s、磁化ダイナミックスの緩和(スピン波-格子の緩和)が $\sim 10^{-11} - 10^{-10}$ s である。いくつかのメカニズムが寄与すると予測される $\sim 10^{-14} - 10^{-11}$ s の時間領域は、最も興味深い。スピンの量子揺らぎと不確定性原理による時間追跡の限界は $\sim 10^{-15}$ s (～1 fs)である。

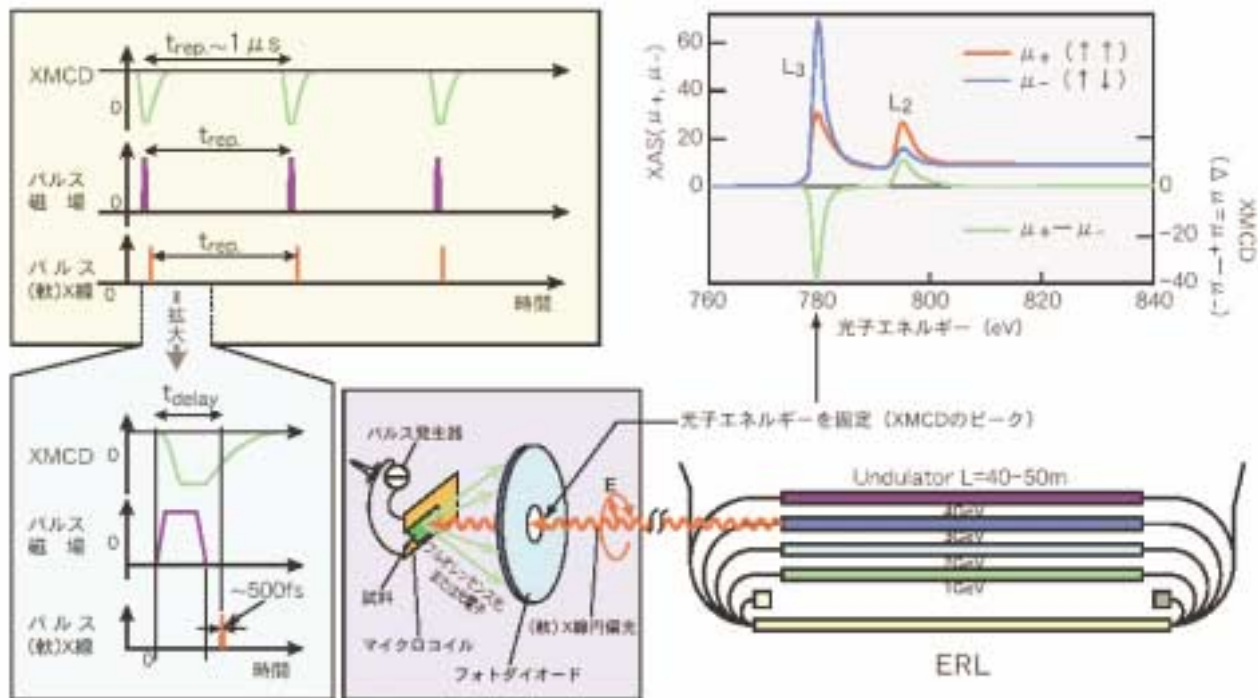


図 2.1.8 時間分解 XMCD 測定概念図。図では光源として ERL を描いたが、スーパーストレージリングの場合は短パルス発生用長直線部に可変偏光アンジュレーターを設置して利用する。

TRXMCD 測定は、単に内殻吸収に限定されない。内殻励起の光電子放出、軟 X 線発光、軟 X 線共鳴散乱における TRXMCD 実験や、時間分解光電子分光顕微鏡でも、基本的には同じ手法が応用できる。信号の検出法が異なるだけである。さらにナノ磁性体の周期長がちょうど軟 X 線の波長と同程度であるから、軟 X 線共鳴散乱での TRXMCD 測定と軟 X 線定在波法を組み合わせれば時間ドメインの界面磁気情報が得られる。時間分解実験上での困難は、超短時間で磁化させ得るパルス磁場の発生であろう。特にパルス磁場の超高速立ち上がり／立ち下がりがキーポイントであり、新しい技術開発を必要とする。

小出常晴 (KEK・PF・放射光科学)

参考文献

- [1] T. Koide, H. Miyauchi, J. Okamoto, T. Shidara, A. Fujimori, H. Fukutani, K. Amemiya, H. Takeshita, S. Yuasa, T. Katayama and Y. Suzuki, Phys. Rev. Lett., 87 (2001) 257201.
- [2] M. Bonfim, G. Ghiringhelli, F. Montaigne, S. Pizzini, N. B. Brooks, F. Petroff, J. Vogel, J. Camarero and A. Fontaine, Phys. Rev. Lett., 86 (2001) 3646.

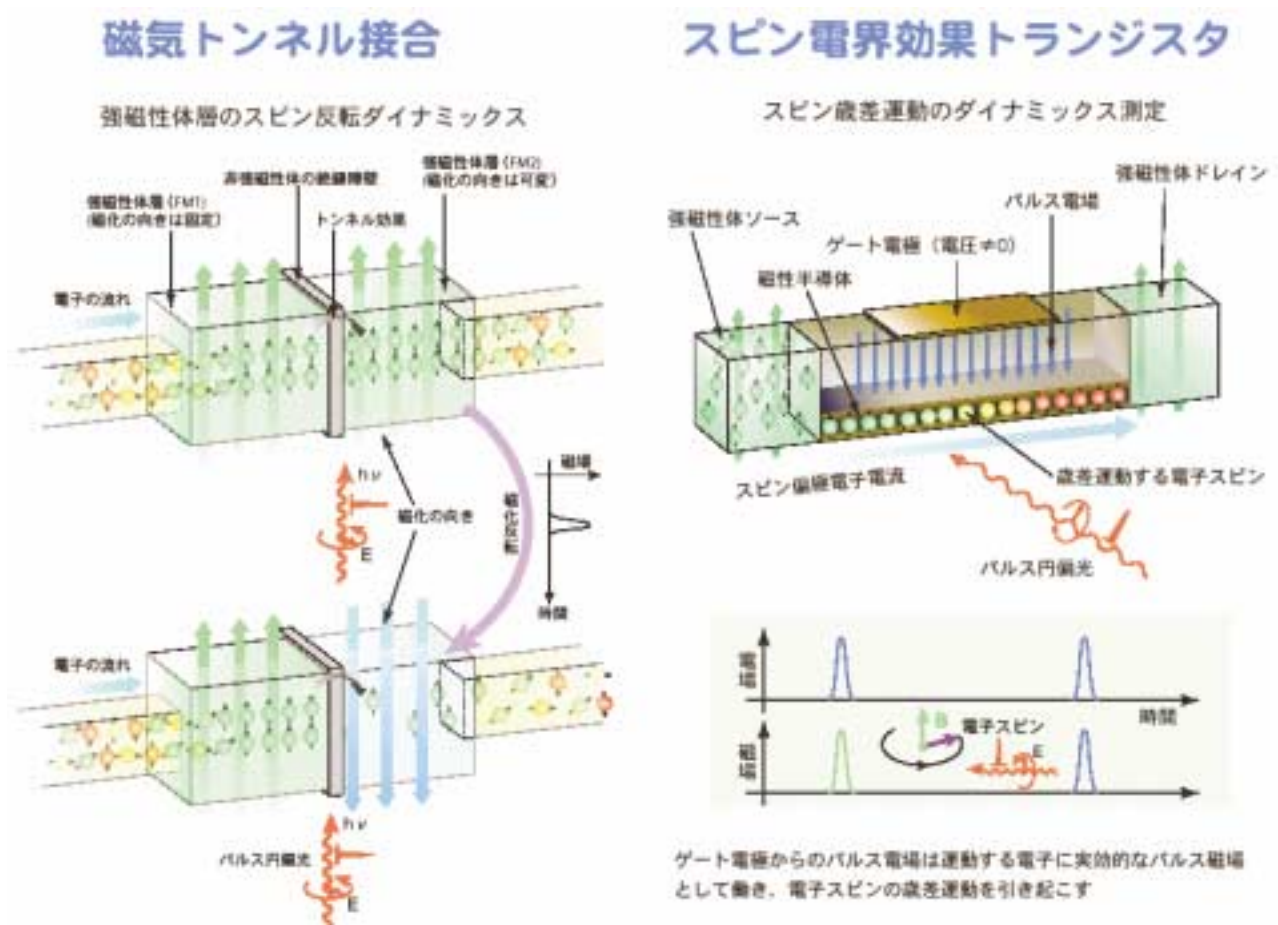


図 2.1.9 磁気トンネル接合とスピン電界効果トランジスタにおけるスピン反転やスピン歳差運動のダイナミクスを、超短パルス磁場または超短パルス電場をポンプに、短パルス円偏光放射光をプローブにして研究する。運動中の電子のスピンは、静止座標系の電場を磁場として感ずることに注意。

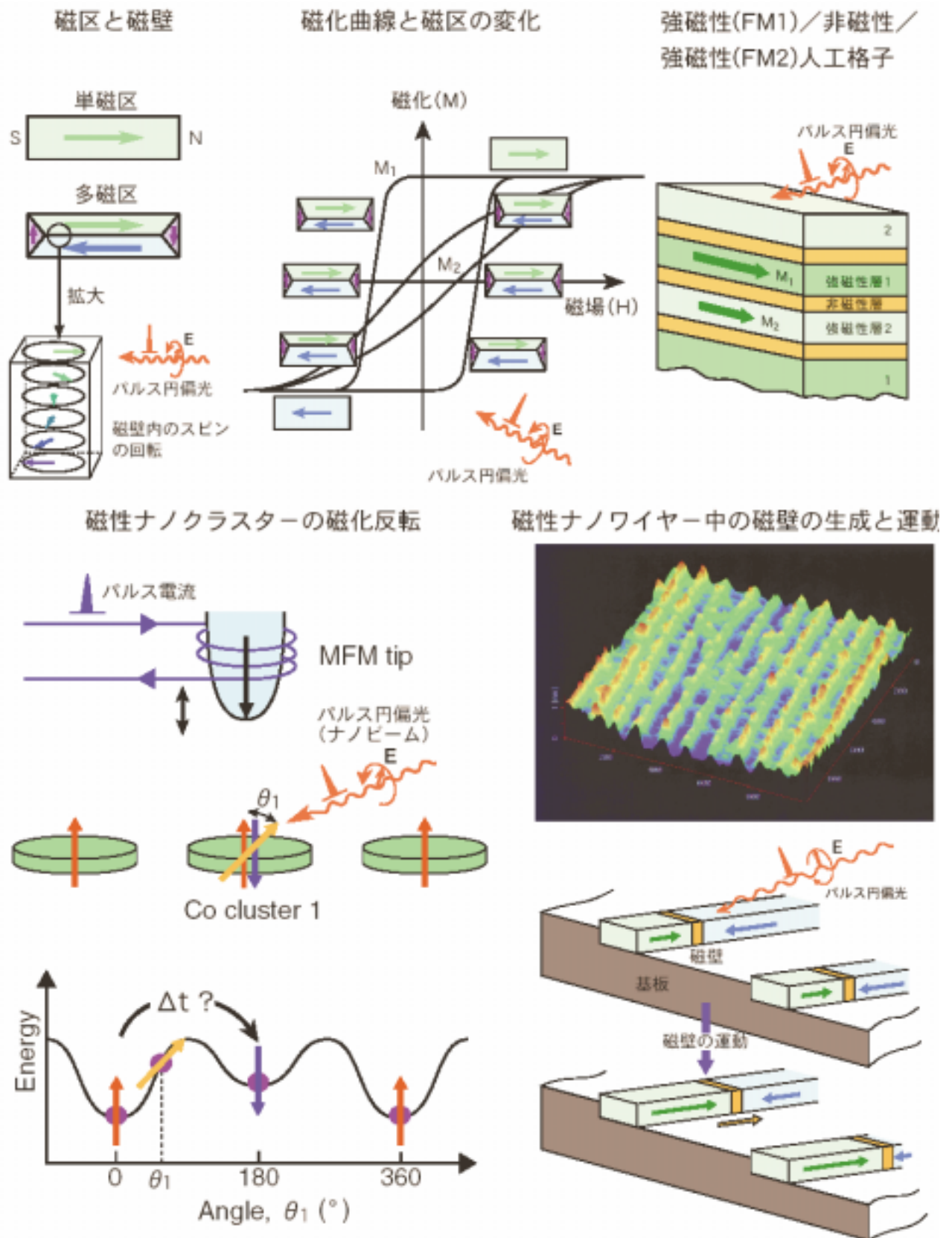


図 2.1.10 超短パルス磁場または超短パルス電流によって磁区や磁壁を動かし、短パルス円偏光放射光で磁区と磁壁内のスピンの時間変化を追跡する。中段右図は磁性ナノワイヤーの AFM 観察である（吉本護氏のご提供）。

2.1.1.5 時間分解 XAFS

XAFS 分光法は、多くの物質の構造や機能を評価するための普遍的な汎用研究ツールとして幅広い化学分野の研究者に利用されるに至っており、固体・液体・気体という試料状態を問わない任意性と比較的低濃度の試料に対する適用性を兼ね備えるその特徴が、幅広い化学分野の研究者からの要請に適合している。また、特に金属元素を含む試料・反応系の場合、金属中心近傍が特異な化学反応を引き起こす活性中心になる場合が多く、原理的に金属元素近傍の局所構造のみを抽出する XAFS 分光法が注目される所以である。このように、静的観測手段の一つとして XAFS 分光法は確固たる地位を築いてきたが、高い反応性を有する短寿命化学種が高機能を達成する本質的鍵化合物であることが多く、そのような物質の構造・物性評価への適用性を満たすことが XAFS 分光法の今後の重要課題であると言える。そのためには、対象化合物の寿命に応じた反応時間の大幅な短縮が必要であるが、PF 新光源の短パルス特性を利用した時間分解 XAFS 分光法はその解である。以下では、時間分解 XAFS 分光法によって初めて可能となる触媒化学及び材料化学分野での幾つかの重要化学物質・反応系を概観する。

1. 太陽光エネルギーを利用した水分解触媒と電池材料

化石燃料資源の枯渇問題に対する有効な解決策の一つが太陽光エネルギーを利用することであり、水分解による水素燃料発生のための触媒系の構築や太陽電池としてのエネルギー変換効率を向上するための光増感剤の開発が精力的に進められている。

TiO₂に端を発する水分解触媒[1]としては、SrTiO₃、K₄Nb₆O₁₇、ZrO₂、Ta₂O₅、K₂La₂Ti₃O₁₀、Sr₂Nb₂O₇など、数多くの物質が合成され、性能評価がなされてきた。現在知られている触媒系の中で、最も高い触媒効率を達成するものの一つが La ドープ NaTaO₃ 混合酸化物触媒 + NiO 助触媒であり [2]、50% を上回る水素発生量子収率を達成する。この極めて高い活性は、比較的長寿命な孤立電子の光誘起生成によるものであることが時間分解 FT-IR による研究で予想されており [3]、ベースである NaTaO₃ やドーパントの La 或は助触媒の NiO との相互作用が重要な役割を担っていると考えられている。これらの金属中心周りの局所構造及び電子状態をパルスレーザー光励起に同期した時間分解 XAFS 分光法で調べることにより、孤立電子を安定化する構造化学的及び電子的要因を探り、水分解触媒の機能との関連を解明することができると期待される。

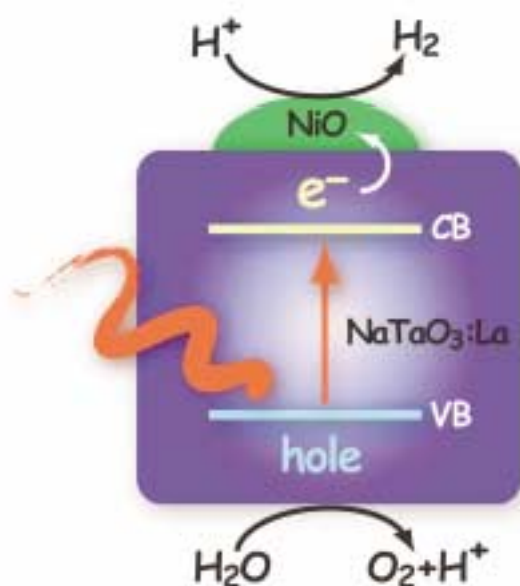


図 2.1.11 NiO/NaTaO₃:La 混合酸化物触媒系の光誘起水分解反応モデル。

太陽光をエネルギー変換するために用いられる TiO_2 光触媒では、その光増感剤として様々な化合物の添加が検討されてきた。中でも、 Fe(II) のポリピリジン錯体やシアノ錯体の光励起状態及びスピントロニクスオーバーのダイナミクスが、フェムト秒からピコ秒レーザーを用いた紫外可視吸収や赤外吸収によって研究されている[4,5]。これらの価電子帯域及び振動領域の情報に加えて、時間分解 XAFS 分光法によって得られる金属中心近傍の局所構造情報を加えることにより、 TiO_2 ベースの太陽電池における光増感作用の本質的な原理を解明することができる。

2. 配位不飽和金属カルボニル錯体の光誘起反応メカニズム

現代社会が抱える重大な環境問題の一つが二酸化炭素による地球温暖化であり、二酸化炭素を還元固定化する高機能触媒系の確立が急務となっている。二酸化炭素を光還元する触媒系としては、可視光駆動の光増感剤と二酸化炭素へ電子供与する電子媒介触媒を組み合わせる場合が多いが[6]、その両者の機能を合わせ持つ幾つかのカルボニル錯体 ($\text{Re(bpy)(P(OEt)}_3)_2(\text{CO})_2^+$ など[7]) も考案されている。これらの化合物における二酸化炭素還元機能は、多くの場合、光励起による脱カルボニルを伴って生じた低原子価配位不飽和金属化学種が二酸化炭素を還元する活性中心であると考えられており、モデル化合物における光誘起脱カルボニル反応のダイナミクスが幅広く研究されている[8,9]。XAFS 分光法は、金属中心近傍の局所構造解析に加えて金属中心上の電子状態解析にも威力を発揮するものであり、時間分解 XAFS 分光法の適用によって、光励起状態はもとより、その後の脱カルボニル過程や二酸化炭素の結合過程、二酸化炭素への電子移動過程などの反応メカニズムを原子レベルで解明できると期待される。この知見は、二酸化炭素を高速・高効率で還元固定化する機能性触媒系を構築するための設計指導原理として重要である。

3. 金属ナノ粒子の構造制御

光化学触媒やセンサー、非線形光学素子材料などへの実用化が期待される Au、Ag、Pd などの金属ナノ粒子は、それらの特徴的な表面プラズモン吸収帯での光励起により、ps~ns オーダーでの電子-フォノン緩和によって[10]、ナノロッド化、崩壊、融合などが引き起こされる[11-14]。また溶液中での化学反応[15]や高温高压条件[16]を使ったナノ粒子の合成方法も提案されており、光照射の波長や強度、化学反応の濃度条件、温度や圧力の反応条件などを最適化することによって、生成するナノ粒子又はナノロッドの形状及びサイズの高精度制御の可能性がある。そのためには、これらの変形メカニズムの解明が必要不可欠であり、時間分解 XAFS 分光法の適用が極めて有効であると期待される。

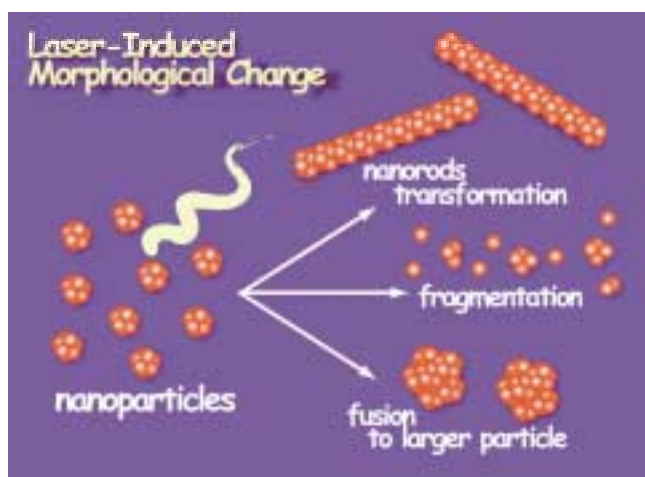


図 2.1.12 金属ナノ粒子のレーザー光誘起形態変化。

4. 光励起金属化学種の構造解析

(1)から(3)で概観した研究対象のほとんどは、光励起された金属化学種が鍵となって進行する化学反応である。金属化学種の光励起ダイナミクスについては、ナノ秒からフェムト秒に至る領域で数多くの研究がなされており、最近では、パルス X 線源を用いた時間分解 XAFS 測定が Ni(II)-ポルフィリン錯体 [17]と Cu(I)-ジイミン錯体[18]について行われている。これらは、項間交差によって生じた短寿命状態の構造を解明することに重点が置かれ、Ni(II)-ポルフィリン錯体では軸配位子の脱離が、Cu(I)-ジイミン錯体では Jahn-Teller 効果による平面方向への変形と軸位からの溶媒分子の相互作用が報告されている。また、様々な触媒系での光増感剤のプロトタイプとして古くから最も広く研究されている[Ru(bpy)₃]²⁺ (bpy = 2,2'-bipyridine) に関して、光励起後の交換交差によって生じる三重項 MLCT 状態についての時間分解 XAFS 測定結果が最近報告された[19]。これらの報告は、光励起金属化学種の構造解析に対して時間分解 XAFS 分光法が有効であることを示しており、更に広範な金属錯体や金属化合物に対する適用が期待される。

稲田康宏 (KEK・PF・放射光科学)

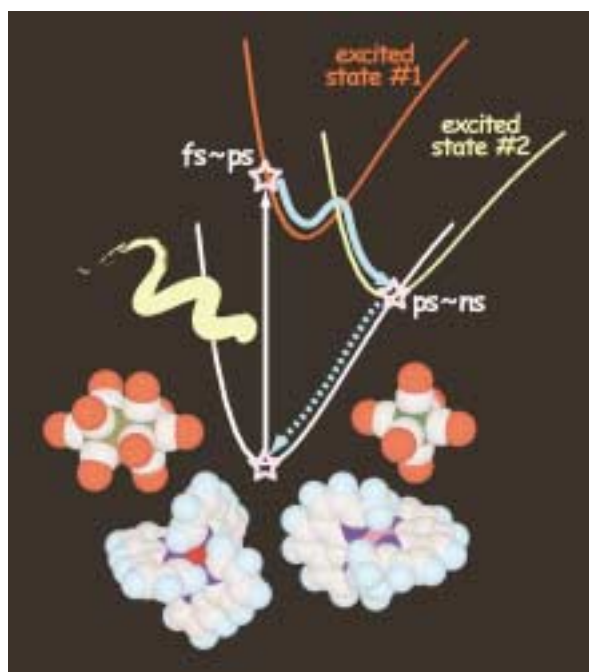


図 2.1.13 金属化学種の光励起状態

参考文献

- [1] A. Fujishima and K. Honda, *Nature* **238** (1972) 37.
- [2] H. Kato and A. Kudo, *J. Phys. Chem. B* **105** (2001) 4285.
- [3] A. Yamakata, T. Ishibashi, H. Kato, A. Kudo and H. Onishi, *J. Phys. Chem. B* **107** (2003) 14383.
- [4] 例えば、J. E. Monat and J. K. McCusker, *J. Am. Chem. Soc.* **122** (2000) 4092.
- [5] 例えば、H. N. Ghosh, J. B. Asbury, Y. Weng and T. Lian, *J. Phys. Chem. A* **102** (1998) 10208.

- [6] 例えば、H. Ishida, T. Terada, K. Tanaka and T. Tanaka, *Inorg. Chem.* **29** (1990) 905.
- [7] O. Ishitani, M. W. George, T. Ibusuki, F. P. A. Johnson, K. Koike, K. Nozaki, C. Pac, J. J. Turner and J. R. Westwell, *Inorg. Chem.* **33** (1994) 4712.
- [8] X.-Z. Sun, M. W. George, S. G. Kazarian, S. M. Nikiforov and M. Poliakoff, *J. Am. Chem. Soc.* **118** (1996) 10525.
- [9] H. Yang, P. T. Snee, K. T. Kotz, C. K. Payne and C. B. Harris, *J. Am. Chem. Soc.* **123** (2001) 4204.
- [10] S. Link and M. A. El-Sayed, *J. Phys. Chem. B* **103** (1999) 8410.
- [11] A. Takami, H. Kurita and S. Koda, *J. Phys. Chem. B* **103** (1999) 1226.
- [12] H. Fujiwara, S. Yanagida and P. V. Kamat, *J. Phys. Chem. B* **103** (1999) 2589.
- [13] Y. Niidome, A. Hori, H. Takahashi, Y. Goto and S. Yamada, *Nano Lett.* **1** (2001) 365.
- [14] F. Kim, J. H. Song and P. Yang, *J. Am. Chem. Soc.* **124** (2002) 14316.
- [15] 例えば、Y. Negishi, H. Murayama and T. Tsukuda, *Chem. Phys. Lett.* **366** (2002) 561.
- [16] 例えば、Y. Kimura, D. Abe, T. Ohmori, M. Mizutani and M. Harada, *Colloids Surf. A: Physicochem. Eng. Aspects* **231** (2003) 131.
- [17] L. X. Chen, G. B. Shaw, I. Novozhilova, T. Liu, G. Jennings, K. Attenkofer, G. J. Meyer and P. Coppens, *J. Am. Chem. Soc.* **125** (2003) 7022.
- [18] L. X. Chen, W. J. H. Jäger, G. Jennings, D. J. Gosztola, A. Munkholm and J. P. Hessler, *Science* **292** (2001) 262.
- [19] M. Saes, C. Bressler, R. Abela, D. Grolimund, S. L. Johnson, P. A. Heimann and M. Chergui, *Phys. Rev. Lett.* **90** (2003) 047403.

2.1.1.6 光誘起構造相転移

1. 研究の背景と目的

光によって物質を高効率で変化させたり、逆に変化の情報を光に再び移しかえたりすることは、今日の光物質科学の最も基本的な課題の一つと考えられる。一つの光子できわめて多数の電子や分子が変化する、つまり、微弱な光励起によって相転移（光誘起協力現象、光誘起相転移）を起こしてしまうような物質の研究が、主にレーザー光の反射率・透過率の測定などによって行われている(図 2.1.14)。光によって引き起こされる構造変化が、光誘起相転移にともなう物性の変化や、その変化の時間スケールの決定

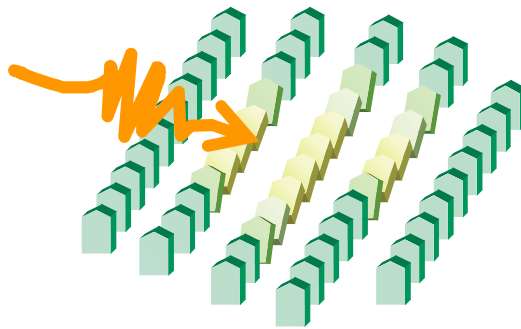


図 2.1.14 光誘起によってドミノ倒しの様に転移が広がっていく様子の模式図。

にとって大変重要な役割を果たしている。これは、局所的な光励起状態から巨視的な物質相変化に至る緩和過程に、物質に内在する共同的な電子-格子相互作用が活躍しているためと考えられる。言い換えれば、基底状態の研究において「黄金律」であった「構造と物性」という関係が、光励起状態という非平衡条件下の物質科学においても、やはり重要であることを示している。

さらにこの研究のより深いところには以下のような物理が潜んでいると考えられる。従来から抱いている通常の物質観では、例えば「鉄は、1050 度以下では強磁性であり、それ以上の温度では常磁性金属である」等々と云うように、常に熱平衡状態のみを議論してきた。しかし、低温である種の絶縁体に光照射すると、この系のどのような平衡状態（低温相、高温相）にも現れない、全く新しいナノ構造秩序を持った半巨視的状态が実現する事が光誘起相転移の研究によって明らかになってきた。つまり、物質の化学的組成を全く変えずに、どの平衡状態にもない非平衡的状态を光で実際に出現させる事が可能になったのである。この機構を解明し、一般的概念として確立することでできれば、我々の物質概念は、これまでよりも一層、重層的で多彩なものとなる。このような観点からの光誘起構造相転移の研究を行うことがひとつの柱としての位置づけとなる。

2. 手法：フェムト秒レーザーによる励起ドメインの生成+X線回折

光誘起による動的・過渡的な物質構造を捕らえるためには、原子間距離程度の波長(X線)を持った、短パルス光源の存在と、相転移を誘起させるためのレーザー光源との組み合わせ利用が必要である。すでに ESRF(ID09)において、電荷移動錯体 TTF-CA における光誘起中性-イオン性相転移（協同的電荷移動）についてピコ秒時間分解構造解析の実験成果があがっている。この系の場合、パルス幅 100 フェムト秒のレーザー光励起によって、この相転移を可逆に引き起こす。これとタイミングを合わせてチョッパーにより切り出されたシングルバンチのビームを試料に照射し、CCDカメラを用いて回折パターンを繰り返し撮影する。レーザー照射の時間と、パルス X線の照射のタイミングをリングからの RF信号を用いて同期させる事によって、光誘起のある時間部分のみの構造解析を行う。ESRFの結果では、協同的電荷移動ダイナミクスは 2-400 ps 以内で完了することが明らかとなりつつある (S. Koshihara et al., J. Phys. Chem. B, 103 (1999) 2592, S. Iwai et al., Phys. Rev. Lett., 88 (2002) 57402 等)。

また最近、有機電荷移動錯体 ((EDO-TTF)²⁺PF₆⁻) 結晶に室温付近で超短パルスレーザーを照射すると、0.2 ピコ秒以内という極めて短時間で金属-絶縁体相転移を示すことが明らかとなった。(M. Chollet et al., Science, 307 (2005) 86.) この系の場合には、相転移に伴う構造変化を追跡するために、次世代放射光源のサブピコ秒 X線パルスが必要不可欠である。

次世代放射光源を用いた時分割解析の手法を適用するためには、二通りの方法が考えられる。ひとつは、上述したような可逆過程における繰り返しを用いた回折情報溜め込みを行って、転移の時間軸に沿った構造変化を、解析していく手法である。これは、外場に同期させたゲート電圧をパルス的に繰り返し与える CCD などのディテクターとパルス X線の切り出しを行う高速シャッターの組み合わせ

で実現できる。

もうひとつは、新しい時分割ディテクターにより非可逆な過程を一気に測定してしまう方法である。後者は現時点での技術では難しいと考えられるが、パルス放射光の発展に伴う新しいディテクター開発に期待をかけた。

また、構造物性の立場からは、物性を議論するためには完全な構造解析が必要とは限らない。共鳴散乱による軌道・電荷の秩序状態を直接観測する方法は、いまやほぼ確立した回折手法となったが、放射光を用いた特定元素の吸収端付近のエネルギーを用いた局所対称性の融解、成長などを時分割で追いかけることは、手軽かつ高い精度の情報を得ることができると期待される。

一方、これらの相転移現象の解析には、格子振動の解析が重要な役割を占める。これらのダイナミクスに関しては、共鳴非弾性散乱による特定元素種の励起状態を時分割解析することで、分散関係などについても議論できるようになると考えられる。この際に必要となる光の高い輝度が得られることも次世代放射光源に大きく期待されることである。

3. 具体的応用例

(a) Ge 結晶の光誘起超高速固相→液相転移、(研究機関 ALS),

Si(111)基盤上に成長させた Ge 薄膜、可視レーザーを照射し Ti K α 線で時間分割構造解析。可視レーザー照射後、約 0.1 ピコ秒で、固相特有のブラッグ・ピクが消失。

(b) VO₂ 結晶での光誘起超高速絶縁体→金属相転移 (研究機関 ALS),

低温モノクリニック型絶縁体に可視レーザーを照射し、Cu K α 線で時間分割構造解析。可視レーザー照射後、約 0.1 ピコ秒で、ルチル型金属相に転移し、ルチル型に特有の回折線を観測。

(c) TTF-CA における光誘起高速中性→イオン性相転移 (研究機関 ESRF)

Beam Line ID09, 中性相にレーザーを照射し、放射光で時間分割構造解析。可視レーザー照射後、約 400 ピコ秒で、イオン性相に特有の二量体化に伴う超格子反射を観測。

(d) 光誘起相転移と熱誘起相転移とは異なると云う実験的証明 (研究機関 SPring-8, BL02b2、守友浩、名大工)

鉄アンモニア錯体結晶の低温反磁性相にレーザーを照射して得られる光誘起常磁性相と、この物質の温度を上げて出来る高温常磁性とを、X線構造解析で比較したところ、両方で常磁性相の格子定数が明瞭に異なる事が判明。

腰原伸也(東京工業大学)、那須奎一郎、澤 博、足立伸一 (KEK・PF・放射光科学)

2.1.1.7 生命科学における構造のダイナミクスと短パルス X 線の利用

1. 研究の背景と目的

タンパク質、核酸といった生体分子の働き(機能)には、必ず生体分子構造の何らかの動き(構造変化、相互作用)が伴っている。それは、自分の体の中で日常的に行われている生理作用(たとえば、呼吸や消化や筋肉の収縮・弛緩といったこと)を思い浮かべれば、合点がいくはずである。生体機能の本質がそのダイナミクスにあるとすると、構造生物学におけるゴールは、生体分子の構造変化・相互作用を明らかにし、そこからその機能を総合的に理解することであるといえる。現在、多くの大規模タンパク質構造解析プロジェクトにより蓄積されつつある構造情報のほとんどは、タンパク質の安定な平衡状態の構造に関するものであるが、これらの構造情報にさらにタンパク質の構造ダイナミクスに関する情報が加わることにより、我々の生体機能に対する知見はより重層的なものとなり、たとえば新規医薬品の開発に対してより多角的な方針を与えることができると期待される。

生体機能が関わる時間領域はフェムト秒から分・時間・日・年単位にいたるまで非常に広範囲に渡っている。たとえばフェムト秒オーダーの極短時間領域では、視覚や光合成など光反応初期過程の励起ダイナミクスがホットな研究課題であり、一方で生体内時計や植物の光周性、発生、分化、老化といった現象では、日から年といった非常に長いサイクルでその生体機能が発現する。このような長期間にわたる生命現象も、要素還元して行けば、生体分子間のトランジェントな相互作用の階層的な積み重ねから形成されている。どの時間領域のイベントもそれぞれに重要であり、生体機能を理解する上で欠かすことができない。この幅広い時間領域の多様性こそが、生体機能の多様性を形作っているといえる。このような生体機能のダイナミクス研究に対して、短パルス X 線が果たしうる役割は何か。それは、生体分子の動きを原子オーダーでスナップショット測定するためのプローブ光としての利用である。今後、どのような測定法が開発されれば、このような生体分子の構造ダイナミクス研究が実現するであろうか。

これまでのところ、放射光を用いて生体分子の非平衡構造のダイナミクスに迫るために有効な手法は、時間分解 X 線小角散乱法と時間分解 X 線結晶回折法である。どちらの方法も長所と短所を併せ持っている。時間分解 X 線小角散乱法は溶液中のタンパク質分子の形体再形成過程や、光反応性タンパク質の反応、筋肉組織などに適用されているが、試料を生理的条件に近い条件において測定することができる反面、試料に原子オーダーでの 3 次元的な規則性がないために、得られる構造情報の空間分解能が原子オーダーにまでには達しない。一方、時間分解 X 線結晶回折法は、主に光反応性タンパク質の単結晶に適用されており、原子レベルでの構造変化を観測することができるものの、試料としては単結晶という環境を壊すことなく構造変化を誘起できるものに限定される。これら 2 つの手法とは異なる第三の方法として、生体単分子または分子クラスターを用いたコヒーレント X 線回折によるオーバーサンプリング法を用いた構造解析の詳細についてはコヒーレンス利用研究の章に譲るが、この手法に短パルス X 線を適用すれば、試料に単結晶を用いることなくサブピコ秒の時間分解能で原子レベルのスナップショットを撮影することが原理的に可能となる。たとえば光反応性を持つ生体試料に対して、極短パルスレーザーで光励起を行い、一定の遅延時間後にコヒーレント短パルス X 線をプローブ光として入射すれば、サブピコ秒オーダーで光反応初期の構造ダイナミクスを原子レベルの空間分解能で追跡できるようになることが期待される。ただし、従来の単結晶または溶液試料を用いた方法では試料の取り扱い方法が確立しているのに対して、単分子またはクラスター状の生体試料の取り扱い方法は現在のところ全く確立されておらず、その方法の確立が今後の最も大きな課題である。例えば、タンパク質分子の質量分析で用いられているエレクトロスプレーイオン化法 (ESI 法) と電場による分子配向制御の組み合わせなど、さまざまな方法が現在提案されている。

2. 手法

時間分解測定では、時間領域での X 線回折または散乱強度変化の測定が基本となる。そのためには、前節でも述べられているとおり、X 線パルスと時間原点を決めるトリガー (レーザーパルスなど) との同期が重要な装置要素となる。X 線パルスの周期と時定数は加速器光源の仕様で決まるので、実験装置側では加速器からの時間情報に基づいて X 線パルス列の分周と同期を行うことになる。X 線パルス列の分周については、たとえば励起用パルス光源として 1 kHz の繰り返しレーザーを使用した場合、X 線パルスの側も 1 kHz に安定に分周することが現在のメカニカルシャッターを用いた技術で可能である。この装置技術は今後 10 kHz 程度までは拡張できると見込まれる。またこのメカニカルシャッターは高真空中で動作するので、X 線領域だけでなく、真空紫外・軟 X 線領域でも使用できる。一方、同期における時間ジッターについては、現在の蓄積リングを用いたレーザー - X 線同期実験において、RF マスター信号を基準信号としてタイミング制御を行うことにより、数ピコ秒程度のジッターが生じている。このジッターの原因としては、測定系のタイミング回路の不安定性以外に、蓄積リングの蓄積電流の低下や他のビームラインでの挿入光源ギャップの開閉に伴う RF バケットの安定位相のドリフトが挙げられる。蓄積リングでの時間分解実験では X 線パルス幅が数 10 ピコ秒なので、このジッターはさほど問題とな

っていないが、今後サブピコ秒の時間分解実験を行う際には大きな問題となると考えられる。

3. 具体的応用例

前述のとおり、時間分解 X 線小角散乱法ではタンパク質分子のフォールディングや、光反応性タンパク質、筋肉組織などの時間分解実験が行われてきた。また生体分子ではないが、溶液中での X 線散乱のピコ秒分解測定为例として、有機溶媒中でのヨウ素分子の光反応をピコ秒オーダーで追跡した測定例があり、今後このような X 線溶液散乱測定が増加すると考えられる[1]。

一方、時間分解 X 線結晶構造解析では、ミオグロビン (図 2.1.15) [2,3]、光反応性イエロープロテイン[4]についてピコ秒オーダーの構造解析が成功している。どちらも比較的分子量のタンパク質であり、また高分解能回折データが得られる良質な結晶が実験に用いられた。その後、時間分解 X 線回折測定の対象は、光合成反応中心複合体などより高分子量でより複雑な系に移行しつつある[5]。

コヒーレント X 線回折によるオーバーサンプリング法については、現状ではまだ単分子の回折実験は始まっておらず、大腸菌を用いた実験例[6]やタンパク質分子を用いたシミュレーション例[7]が報告されている。SLAC での LCLS 建設開始を受けて、ユーザー実験計画グループが活動を開始しており、今後方法論の開発が急速に進むものと考えられる。

足立伸一 (KEK・PF・放射光科学)

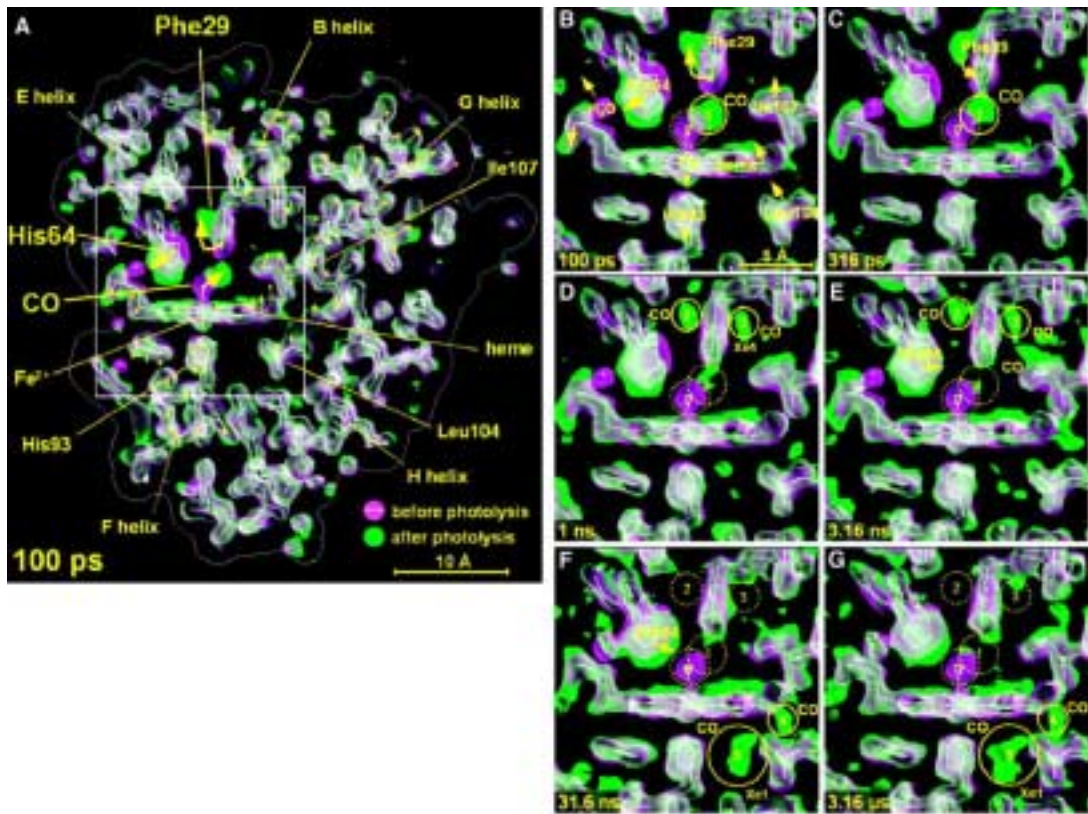


図 2.1.15 ミオグロビンに結合した CO 分子が光解離し分子内拡散する様子を捉えた電子密度図。(A) CO 解離前と解離 100 ピコ秒後の電子密度図を重ね合わせて表示。ヘム周辺の比較的大きな動きが観測される部分を矢印で示している。(B)–(G)CO 光解離 100 ピコ秒後から 3.16 マイクロ秒後までの電子密度変化を表示。CO 分子がミオグロビン分子内で拡散する際に比較的安定にトラップされるサイトを 1-5 の番号で示している。

参考文献

- [1] Plech A, Wulff M, Bratos S, Mirloup F, Vuilleumier R, Schotte F, Anfinrud PA. Phys Rev Lett. **92** (2004) 125505.
- [2] Srajer V, Teng T, Ursby T, Pradervand C, Ren Z, Adachi S, Schildkamp W, Bourgeois D, Wulff M, Moffat K. Science, **274** (1996) 1726.
- [3] Schotte F, Lim M, Jackson T. A., Smirnov A. V., Soman J., Olson J. S., Phillips, Jr. G. N., Wulff M. Anfinrud P. A. Science, **300** (2003) 1944.
- [4] Perman B, Srajer V, Ren Z, Teng T, Pradervand C, Ursby T, Bourgeois D, Schotte F, Wulff M, Kort R, Hellingwerf K, Moffat K. Science. **279** (1998) 1946.
- [5] Baxter RH, Ponomarenko N, Srajer V, Pahl R, Moffat K, Norris JR. Proc Natl Acad Sci U S A. **101** (2004) 5982.
- [6] Miao J, Hodgson KO, Ishikawa T, Larabell CA, LeGros MA, Nishino Y. Proc Natl Acad Sci U S A. **100** (2003) 110.
- [7] Miao J, Hodgson KO, Sayre D. Proc Natl Acad Sci U S A. **98** (2001) 6641.

2.1.1.8 時分割光電子顕微鏡 (PEEM)

放射光光電子顕微鏡は、光電子顕微鏡 (PEEM) を放射光の持つ輝度、偏光性、エネルギー可変性、パルス性と組み合わせることにより、ナノスケールの微小領域でのイメージングおよび顕微分光を行う手法である。放射光光電子顕微鏡を用いることにより、ナノ磁性体の磁区構造や磁化反転過程などの磁性体のダイナミクス、あるいは触媒などの化学反応について放射光パルス程度の時間分解能で実空間観察することが可能になる。

放射光光電子顕微鏡を用いたイメージングの利点は以下のとおりである。

- 1) 結像を電子レンズで行っているため、光のコヒーレンスに依存せず比較的簡単に高い空間分解能 (10 nm 程度) が得られる。特に X 線領域で高い空間分解能が得られることは大きなメリットであると思われる。
- 2) 吸収端を選ぶことにより元素選択的なイメージング (化学イメージング) が可能。エネルギースキャンをすることにより、視野の中の任意の場所で 10 nm 程度の分解能で X 線吸収スペクトルを測定することが出来る (nano-XAFS)。
- 3) 磁性体では円偏光と磁気光学総和則を用いて、磁気モーメントのスピ成分と軌道成分の寄与を分離し、かつ定量的に実空間上にマップすることが出来る。また、直線偏光を用いることにより、反強磁性体の磁区構造や軌道秩序の様子などについて直接観察することができる。
- 4) 放射光パルスと外部からのパルスを同期させることにより、時分割測定を行うことが出来る。完全に同期させることが出来れば、通常の測定と全く同じ強度で時分割測定を行うことが出来る。

このような利点があるため、世界の放射光施設では光電子顕微鏡を用いた時分割実験が盛んに行われている。ALS ではサブナノ秒の時間分解能で既にメゾスコピック磁性体のダイナミクスについて報告されている。また、BESSY II では low- α mode と呼ばれる特殊な運転モードにより、10 ピコ秒程度の時間分解能での測定が行われている。磁性体では通常強磁性共鳴周波数は数 GHz 程度であるため、通常の磁化反転ダイナミクスの直接観察には 100 ピコ秒程度以下の時間分解能が必要である。さらに、電子スピンの回転などを直接観察しようとするときにさらに高い時間分解能が必要である。時分割光電子顕微鏡の時間分解能は放射光のパルス幅で決まっているため、時間分解能を上げるには放射光パルスの幅を狭くすることが不可欠である。このため、次世代放射光源でのサブピコ秒のパルス幅は非常に魅力的である。サブピコ秒の時間分解能での時分割実験により、THz 領域でのダイナミクスまで測定可能になることで、磁性体だけではなくフォトンクス材料などへも応用の幅を広げていくことが可能になる。THz 領域でのダイナミクスの実空間観察では、励起状態のイメージング、キャリア散逸の様子の可視化など、基礎的な観点からも応用上の観点からも重要な課題が多く残されているように思われる。

また、将来の量子コンピューティングへの応用を考えると次のような応用分野が考えられる。核スピンの情報をナノ磁性体へ転写し、ナノ磁性体のダイナミクスを測定することが出来れば、核スピンの情報 (NMR) について 10 nm 程度の空間分解能での実空間でのイメージングを行うことが可能になる。このように時分割光電子顕微鏡の性能が進めば、顕微 NMR などの分野も切り開くことが出来ると考えられる。

さらに、1 パルスあたりの光子数が十分に多い場合には、1 パルスでイメージを取得することが可能になるため、放射光のバンチの繰り返し周波数程度での動画観察が可能になる。現状では画像の転送速度がネックになるため、なかなか実現は難しいと思われるが、次世代放射光源では 1 フレームあたりマイクロ秒〜ナノ秒で動画観察を行うことが克服すべき課題となるであろう。このような短い時間間隔での動画観察技術により、触媒反応などの分野に大きな変革をもたらすことが出来るようになると思われる。

小野寛太 (KEK・PF・放射光科学)

2.1.2 X線の位相やコヒーレンスを利用する研究

2.1.2.1 序論

近年、X線のコヒーレンスや位相情報を利用する研究が急速に進みつつある。これを象徴的に示しているのが図 2.1.16 である。これは 1990 年代後半以降、欧米の科学誌の表紙を飾った写真であるが[1-3]、いずれも X線の位相情報を利用して試料を撮影したものである。また、X線のコヒーレンスに関連する国際会議も近年頻繁に開催されるようになってきている。たとえば 2003 年には、オーストラリアのケアンズで "International Workshop on Noncrystallographic Phase Retrieval" という会議が開催されており[4]、また SRI2003 では "X-ray Science with Coherent Radiation" というサテライトミーティングが開催されている[5]。さらに今年の 6 月には、前者の国際会議の続編として、"International Workshop on Phase Retrieval and Coherent Scattering" という会議がフランスで開催される予定である[6]。また国内を見ても、2002 年秋には PF シンポジウム「X線位相利用計測における最近の展開」が開催されており[7]、また 2003 年春の物理学会でも「X線・中性子線による干渉計測の最近の展開」というシンポジウムが開催されている[8]。さらに前者に関しては、今年の 5 月に「X線位相利用計測における最近の展開 II」という続編の PF シンポジウムも開催される予定である[9]。このように X線のコヒーレンスや位相情報を利用する研究に注目が集まりつつある背景には、第三世代放射光源の登場や微小焦点 X線発生装置の進歩などがある。しかし、この分野のさらなる発展のためには、これらの既存の光源だけではまだまだ不十分であり、さらなる光源の進歩が必要である。

現在、世界各地で様々な放射光源の計画や建設が進められているが、それらは (a)新第三世代光源、(b) X線自由電子レーザー (XFEL) [10-11]、(c)エネルギー回収型直線加速器 (ERL) [12-13]の三つに大別することができる。XFEL の場合、光源自体がコヒーレントな機構を持つためにコヒーレント光が得られる。それに対して、ERL と新第三世代光源の場合、光源自体はカオティックであるが、小さな光源を遠くから見るにより空間的コヒーレンスが向上する。コヒーレント成分の割合について見ると、XFEL では 100%であるが、ERL では数%~20%、新第三世代光源では大体 1%以下である。

これらの光源については、これまで Photon Factory (PF) においても将来計画との関連で詳細に検討がなされてきたが、今回新たに検討されているのは基本的には 3GeV クラスの新第三世代光源である。光源のパラメーターとしては、 $\varepsilon_x = 1 \text{ nmrad}$ 、 $\varepsilon_y = 1 \sim 0.1 \text{ pmrad}$ という値が想定されている。これは NSLS で計画されている将来光源 (NSLS-II) [14]のスペックに近いので、NSLS-II の輝度のグラフを参考にすると、VUV・SX から X線までの広いエネルギー領域で高輝度光が得られること、さらに X線領域に限



図 2.1.16 X線の位相情報を利用して得られた試料像 [1-3]

って見ても SPring-8 と同程度の輝度が得られることがわかる。次にコヒーレント成分の割合について見ると、 $E = 8\text{keV}$ の X 線の場合、アンジュレーターの高さを 5m とすると、SPring-8 では 0.13% となり、PF の新光源では約 1% となる。したがって、得られるフラックスはほぼ同じなので、PF の新光源では SPring-8 よりも約 1 桁大きいコヒーレントフラックスが得られることになる。

今回検討されている光源が従来の新第三世代光源と比べて特にユニークなのは、ソレノイドとスキュー 4 極電磁石によるエミッタンス制御という新しいアイデアを取り入れている点である。このアイデアを実現させるには様々な技術的困難が予想されるため、今後注意深く検討を進めていくことが必要であろう。しかし、もしこのアイデアが実現されれば、ERL 光源とほぼ同程度のコヒーレントフラックスが得られるようになり、単分子イメージング等の画期的研究を行う道が拓かれることになる。

このように、現在検討されている新光源 — PF Super Storage Ring — は汎用性と先端性の両方を兼ね備えたユニークな光源である。この新光源が実現すれば、特に次のような点でコヒーレンス利用研究の発展に大きく寄与するであろうと考えられる。

・高輝度

VUV・SX から X 線に至るまでの広いエネルギー領域で高輝度光が得られるため、位相型イメージングや位相型顕微鏡といった従来のコヒーレンス利用研究で、空間分解能、時間分解能、コントラスト等を向上させることができる。

・丸ビーム

従来の放射光源では、光源が扁平な形をしていたため、水平方向と垂直方向で空間分解能が異なるという問題があった。しかし、ソレノイドとスキュー 4 極電磁石によるエミッタンス制御で丸いビームが得られるようになれば、特にスリット等でビームを整形するまでもなく、水平方向と垂直方向で等しい空間分解能が得られるようになる。

また、追加収束系により ERL 光源と同じくらい小さな丸ビームが得られれば、ゾンプレート、屈折レンズ、KB ミラー等の集光素子を使って、全フラックスを回折限界のスポットサイズにまで集光することが可能になる。

・高コヒーレントフラックス

エミッタンスが SPring-8 よりも改善されるため、コヒーレントフラックスが増大する。これにより位相型イメージング研究のさらなる発展が見込まれる。また、ソレノイドとスキュー 4 極電磁石によるエミッタンス制御で ERL 光源に匹敵するコヒーレントフラックスが得られるようになれば、単分子イメージング等の画期的研究が可能になる。

X 線のコヒーレンスや位相情報を利用する研究は非常に多岐に渡っており、光源の著しい進歩と共に急速に発達しつつある。PF の新光源は、それらすべての研究のさらなる発展を促すものとなるであろう。特に重要だと思われる研究テーマとしては、位相型 X 線イメージング、X 線コヒーレント散乱顕微鏡、X 線光子相関分光法などを挙げることができる。これらについては、2 年前に出版された「放射光将来計画検討報告 — ERL 光源と利用研究 —」[13]でも取り上げられているが、その後も急速に発展を遂げているため、ここでも再び取り上げることにする。

本節では、まずアンジュレーター放射のコヒーレンス特性について述べ、次にソレノイドとスキュー 4 極電磁石によるエミッタンス制御という新しいアイデアについて紹介する。それから、コヒーレンス利用研究の展望について述べることにする。

参考文献

- [1] Nature Medicine 1996 年 4 月号 表紙。
- [2] Nature 1996 年 Vol.384 表紙。
- [3] Physics Today 2000 年 7 月号 表紙。
- [4] 百生敦 : 放射光 **16** (2003) 362.
- [5] 平野馨一 : PF News Vol.21 No.3 (2003) 48.
- [6] <http://www.esrf.fr/Conferences/Coherence2005>
- [7] 百生敦、平野馨一 : PF News Vol.20 No.4 (2003) 38.
- [8] 平野馨一 : 日本物理学会誌 Vol.58 No.3 (2003) 625.
- [9] 百生敦、平野馨一 : PF News Vol.22 No.4 (2005) 30.
- [10] “LCLS the First Experiments”, Ed. by G. K. Shenoy and J. Srohr, Stanford Linear Accelerator Center, Stanford (2000).
- [11] “TESLA Technical Design Report Part V: The X-ray Free Electron Laser”, Ed. By G. Materlik and Th. Tschentscher, Deutsches Elektronen Synchrotron, Hamburg (2001).
- [12] “Study for a proposed phase I energy recovery linac (ERL) synchrotron light source at Cornell University”, Ed. by S. M. Gruner and M. Tigner, Cornell University, New York (2001).
- [13] 「放射光将来計画検討報告 —ERL 光源と利用研究—」 編集 諏訪田剛 飯田厚夫、2003 年 3 月、高エネルギー加速器研究機構。
- [14] <http://www.nsls2.bnl.gov/>

2.1.2.2 アンジュレーター放射のコヒーレンス特性

簡単にアンジュレーター放射の特徴について概観する。電子ビームはアンジュレーター内を Z 方向に進み、アンジュレーターの磁場は $\vec{B} = B_u \cos(k_u z) \vec{y}$ で与えられるとする。このとき、電子ビームは XZ 面内を蛇行することになる。アンジュレーターの性能は周期長 λ_u と K パラメーター ($K = 0.934 \lambda_u [cm] B_u [T]$) によって記述される。

アンジュレーター内を蛇行しながら進む電子から放射される光のエネルギーは

$$E_n[\text{keV}] = \frac{0.95 \cdot E_G^2[\text{GeV}]}{(1 + K^2/2)\lambda_u[\text{cm}]} n \quad (2.1.1)$$

で与えられる。ここで E_G は電子ビームのエネルギーであり、 n は奇数の整数である。またフラックスは周期数 N_u と電流値 I に比例し、

$$F_n[\text{ph/s}/0.1\%b.w.] = 1.431 \times 10^{14} N_u Q_n I[\text{A}] \quad (2.1.2)$$

となる。ビームのブライトネス B_r と輝度 B は、光源の実効サイズ $\Sigma_{x,y}$ と実効角度発散 $\Sigma'_{x,y}$ を用いて

$$B_r = \frac{F_n}{2\pi \Sigma'_x \Sigma'_y} \quad B = \frac{F_n}{4\pi^2 \Sigma_x \Sigma'_x \Sigma_y \Sigma'_y} \quad (2.1.3)$$

で与えられる。さらに $\Sigma_{x,y}$ と $\Sigma'_{x,y}$ は、電子ビームのサイズ $\sigma_{x,y}$ と角度発散 $\sigma'_{x,y}$ 、それから光子の自然サイズ σ_r と自然角度発散 σ'_r を用いて

$$\Sigma_{x,y} = \sqrt{\sigma_{x,y}^2 + \sigma_r^2} \quad \Sigma'_{x,y} = \sqrt{\sigma'_{x,y}{}^2 + \sigma'_r{}^2} \quad (2.1.4)$$

で与えられる。アンジュレーター長の長さを L とすると、光子の自然サイズ σ_r と自然角度発散 σ'_r は

$$\sigma_r = \sqrt{2\lambda L}/(4\pi) \quad \sigma'_r = \sqrt{\lambda/2L} \quad (2.1.5)$$

となる。ちなみに σ_r と σ'_r の間には $\sigma_r \sigma'_r = \lambda/(4\pi)$ という関係が成り立つ。

次に、アンジュレーター放射の空間的コヒーレンス特性について見ることにする（図 2.1.17）。いま、光源の大きさを $d_{x,y}$ とすると、空間的にコヒーレントなアンジュレーター放射の角度幅は

$$\delta\theta_{x,y} = \frac{\lambda}{2d_{x,y}} \quad (2.1.6)$$

で与えられる。コヒーレントフラックスは、この角度領域内に放射される光子数であり、

$$F_c = B_r \cdot \delta\theta_x \delta\theta_y = \frac{F_n \cdot (\lambda/2)^2}{2\pi \Sigma'_x \Sigma'_y \cdot d_x d_y} = \left(\frac{\lambda}{2}\right)^2 B \quad (2.1.7)$$

となる。フラックスと輝度の単位に注意すると、この式は

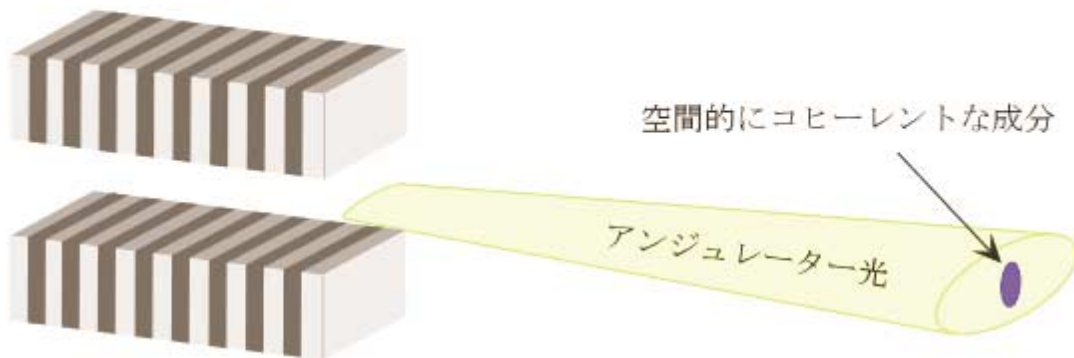


図 2.1.17

アンジュレーター放射

$$F_c [ph/s/0.1\%b.w.] = 10^{-8} \cdot \left(\frac{\lambda[A]}{2} \right)^2 B [ph/s/mm^2/mrad^2/0.1\%b.w.] \quad (2.1.8)$$

と換算される。(2.1.3)式と(2.1.7)式より、空間的にコヒーレントな成分の割合 P_c は

$$P_c = \frac{F_c}{F_n} = \frac{\lambda^2}{(4\pi)^2 \Sigma_x \Sigma'_x \Sigma_y \Sigma'_y} \quad (2.1.9)$$

となる。この式を見ると分かるように、 P_c を向上させるには電子ビームのサイズを光子の自然サイズに近づけることと、電子ビームの角度発散を光子の自然角度発散に近づけることの両方が必要である。

例として、PFの新光源で得られる P_c を見積もることとする。光源のパラメーターを $\epsilon_x = 1 \text{ nmrad}$ 、 $\epsilon_y = 0.1 \text{ pmrad}$ とし、アンジュレーターの高さを $L = 5 \text{ m}$ とする。また、アンジュレーター設置地点におけるベータ関数を $\beta_x = 5.0 \text{ m}$ 、 $\beta_y = 2.5 \text{ m}$ とする。この時、電子ビームのサイズは $\sigma_x = 70.7 \text{ }\mu\text{m}$ 、 $\sigma_y = 0.5 \text{ }\mu\text{m}$ となり、角度発散は $\sigma'_x = 14.1 \text{ }\mu\text{rad}$ 、 $\sigma'_y = 0.2 \text{ }\mu\text{rad}$ となる。他方、 8 keV の光子の自然サイズ σ_r と自然角度発散 σ'_r を計算すると、 $\sigma_r = 3.13 \text{ }\mu\text{m}$ 、 $\sigma'_r = 3.94 \text{ }\mu\text{rad}$ となる。これより、水平方向のコヒーレント成分は 1.19% 、縦方向は 98.6% となり、全体では $P_c = 1.17\%$ となる。この計算結果からまず分かることは、PFの新光源で想定されている $\epsilon_y = 0.1 \text{ pmrad}$ という値は、コヒーレント光を得るという観点からすると、必要以上に小さいということである。仮に $\sigma_y \sim \sigma_r$ 、 $\sigma'_y \sim \sigma'_r$ 程度で良いとすると、 $\epsilon_y \sim 1 \text{ pmrad}$ 程度で十分である。次に分かることは、水平方向のエミッタンス ϵ_x が大きいせいで P_c が悪化しているということである。したがって、 P_c を改善するには ϵ_x をもっと小さくしなければならない。参考までに、 $10\text{eV} \sim 100\text{keV}$ のエネルギー領域について行った計算結果を図 2.1.18 に示す。

PFの新光源は、他の放射光源と比べて、果たしてどれくらいの性能を発揮するのであろう？PFの新光源に関しては、まだラティスの設計が済んでいない段階なので、その性能を精確に計算することはできない。しかし、NSLSで検討されている新光源(NSLS-II)はPFの新光源に近いスペックを持っているので、その性能を参考にすることができるであろう。

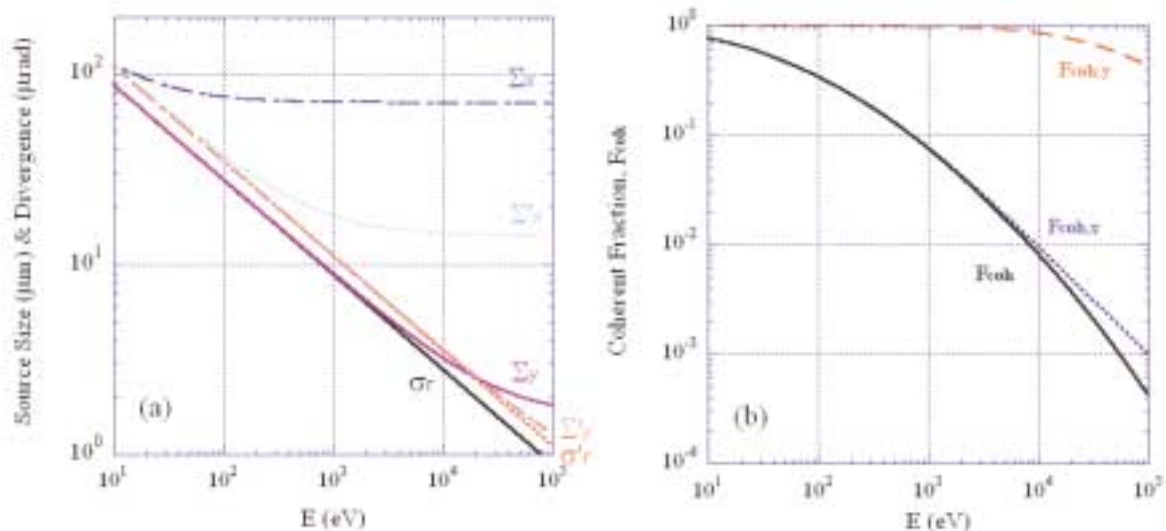


図 2.1.18 (a)光源のサイズと角度発散等の計算例 (b)コヒーレント成分の割合の計算例。

計算条件は $\epsilon_x = 1 \text{ nmrad}$ 、 $\epsilon_y = 1 \text{ pmrad}$ 、 $\beta_x = 5.0 \text{ m}$ 、 $\beta_y = 2.5 \text{ m}$ 、 $L = 5 \text{ m}$

表 2.1.1 光源の性能の比較 (8keV の X線の場合) [1-2]

		SPring-8 undulator @ 8 GeV		NSLS II undulator @ 3GeV	CHESS-ERL undulator @ 5 GeV	
Beam current		100 mA	100 mA	500 mA	100 mA	10 mA
Undulator length		25 m	5 m	5 m	25 m	25 m
Source size (μm)	horizontal	892	892	217	103	24.5
	vertical	22.8	10.6	12.83	103	24.5
Source div. (μrad)	horizontal	37.4	38.4	41.74	9.1	6.2
	vertical	4.3	10	10.16	9.1	6.2
Beam size @ 50m (μm)	horizontal	2761	2813	2291	560	332
	vertical	236	509	521	560	332
Brilliance(ph/s/0.1%/mm ² /mr ²)		2.2×10^{21}	5.0×10^{20}	2.0×10^{21}	1.3×10^{22}	5.2×10^{22}
Flux(ph/s/0.1%)		9.0×10^{15}	2.4×10^{15}	4.0×10^{15}	1.5×10^{16}	1.5×10^{15}
Coherent Flux(ph/s/0.1%)		1.3×10^{13}	3.0×10^{12}	1.7×10^{13}	8.1×10^{13}	3.1×10^{14}
% beam coherence		0.14	0.13	0.42	0.52	20

表 2.1.1 は 8 keV の X 線に関して光源の性能を比較したものである[1-2]。輝度について見ると、NSLS-II で得られる輝度は SPring-8 の 1~4 倍であり、ERL 光源の約 1/6~1/25 である。次にフラックスについて見ると、NSLS-II で得られるフラックスは SPring-8 と同程度であるが、高フラックスモードの ERL 光源の約 1/4 になる。さらにコヒーレント成分の割合について見ると、NSLS-II では SPring-8 の約 3 倍になるが、高コヒーレンスモードの ERL 光源の約 1/50 である。最後にコヒーレントフラックスについて見ると、NSLS-II では SPring-8 の約 1~6 倍となるが、高コヒーレンスモードの ERL 光源の約 1/20 となる。この比較から分かるように、NSLS-II では SPring-8 等で行われているコヒーレンス利用研究をさらに一歩進めることはできるものの、残念ながら ERL 光源には及ばない。したがって、単分子イメージングを例に取ると、ERL 光源なら何とか可能であるが、NSLS-II ではおそらく困難であろう。

PF の新光源が NSLS-II のような新第三世代光源と大きく異なっているのは、ソレノイドとスキュー 4 極電磁石によるエミッタンス制御という新しいアイデアを取り入れている点である。この技術がもし実現すれば、ERL 光源なみの性能を局所的に実現することが可能になり、コヒーレンス利用研究の飛躍的発展がもたらされるであろうし、単分子イメージングも可能になるであろう。そこで次節では、この技術について詳しく紹介することにする。

平野馨一 (KEK・PF・放射光科学)

参考文献

[1] "Study for a proposed phase I energy recovery linac (ERL) synchrotron light source at Cornell University", Ed. by S. M. Gruner and M. Tigner, Cornell University, New York (2001).

[2] <http://www.nsls2.bnl.gov/>

2.1.2.3 ソレノイドとスキュー 4 極電磁石によるエミッタンス制御

1. 概要

ソレノイド電磁石とスキュー 4 極電磁石を用いた局所的なビームオプティクス変換系をリングに挿入し、垂直エミッタンスの非常に小さなビームを変換して、ソレノイドの中でほぼ完全に平行なビームを得る方法について述べる。変換全体の概略図を図 2.1.19 に示す。一般の高輝度光源においては垂直方向のビームサイズは光のエミッタンスに対して必要以上に小さいことがあり、その様な場合、垂直方向のビームサイズを大きくする代わりに水平方向のビームサイズを小さくすることで、光の質が向上する。原理的には、エミッタンス 1nmrad、カップリング 0.01% のビームから、水平垂直エミッタンスがともに 10 pmrad のビームを作ることができる。現実の装置設計や誤! の影"、高次# の影"などを \$ む数多くの困難を%&し、これを実現することができれば、エミッタンスに関しては現時点で想定されている ERL と同等の光を一般的な高輝度光源において局所的に作り出すことができる可能性がある。

2. 背景

' 面形(が平たいビームを丸いビームに変換する) 法は、重* 子加速器における電子ビーム+, の- に考. された。一般に、重いものに / いものが O つかった場合、重いものから / いもの 1 と 2 3 4 が 5 3 する。すなわち、ほぼ平行な電子ビームと、乱 6 に 2 3 する重* 子ビームとを重ねて 7 らせれば、重* 子ビームは電子ビームを 8 散らす代わりに 2 3 の乱 6 さが 9 : する。電子ビームを用いて重* 子ビー

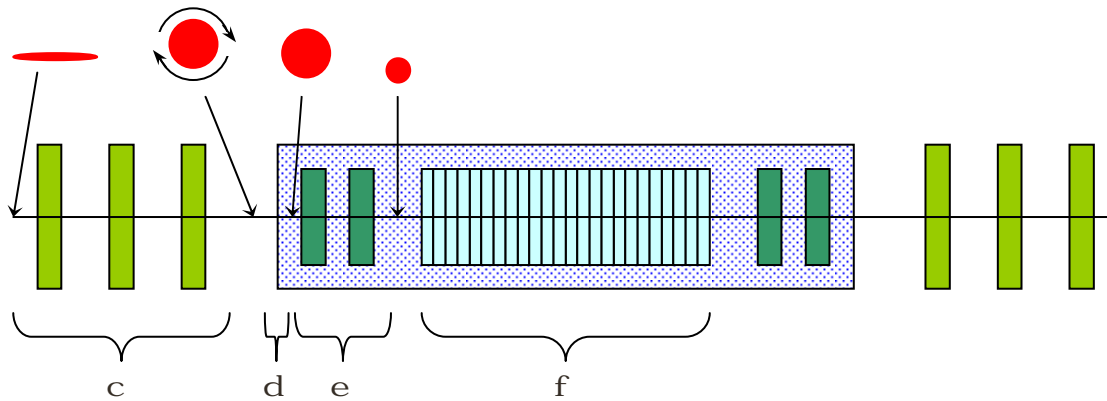


図 2.1.19 ビーム変換全体の概念図。

- c、スクュー4極電磁石によるマッCングDで扁平なビームをA形のE(に変換。
- d、ソレノイド端の磁場によるキックでEの回GをMめ、平行ビームを作る。
- e、ソレノイドの中の追加集束系でビームサイズを小さくする。
- f、ソレノイドの中の挿入光源から光を発生。

ムの平行度を増やすことが電子ビーム+, の目的である。一般に電子ビーム+, には電子; から出た電子を< 電加速・集束系を=して用いられているが、そこで> エミッタンス電子シンク? ト? ンからの電子を用いることができれば、+, 効@は飛躍的に向上する。ただし、シンク? ト? ン放射のない重* 子ビームの' 面形(はほぼA形に近く、一方で電子シンク? ト? ンのビームは扁平である。そこで、電子シンク? ト? ンの平たいビームを丸く変形するという、スクュー4極電磁石とソレノイド電磁石によるビーム変換が考. された[1-2]。

3. ビーム変換の原理と変換後のビームサイズ

リングをまわるビームの' 面形(は扁平で、垂直方向のビームサイズはほぼB? であるとする。まず、スクュー4極電磁石を用いたマッCングDで、平たいビームを丸いE(に変換する。E(とはすなわち、' 面形(が丸く、234がほぼF線方向(Eが回Gする方向)だけに向いている(Hである。その様な(HのビームをI JなKさのソレノイドに=すと、ソレノイドの入りLの端磁場のキックにより、Eの回Gをほぼ完全にMめることができる。ビームはソレノイド内でほとんど完全な平行ビームとなる。ソレノイドの中をまっすN=りOけたビームは、ソレノイドの出Lの端磁場によるキックで再び回GをPめ、スクュー4極電磁石を用いたQ変換D(ソレノイド)前のマッCングDのQ向き)によって再び平たいビームにRる[3-5]。

挿入光源はソレノイドの中に設置されるが、ビームサイズを ERL と同等まで小さくする- には、ソレノイドの中に追加の集束系を設置する必要がある。この変換は、光のエミッタンスに対して垂直方向のエミッタンスのみ非常に小さくてアンSランスだった電子ビームを、水平垂直両方向ともに光ビームと同程度のエミッタンスにすることで、効@的に光を発生させるという- の変換である。ただし、この変換においてT期垂直エミッタンス(カップリング)を小さくUえることで向上するのは、まずは平行度であるということに注意が必要である。ビームサイズについては追加集束系が必Vである。以下で変換の原理とビームサイズについて解Wを行う。

(i) ソレノイドの端の磁場について

まずPめにソレノイドの出入りLの端磁場によるキック4をX出する。現実には詳細な磁場分Yを計算に考Zする必要があるが、ここでは簡単化したモデルで[う。

ソレノイドの中では磁場は\方向を向いており、\に垂直な'面上での磁束の分Yは一樣だとする。磁場には]き出しが存在しない-、^意の_`面を=りOける磁束のaはB?になる。そこで、b方の端

がソレノイドの \mathbf{k} にあり、もう \mathbf{b} 方がソレノイドの中にある様な半長 γ の長い \mathbf{Am} を \perp 面として考える (図 2.1.20)。ソレノイド内では磁場は \perp 方向を向いている、そちら \mathbf{n} の \perp 面から流入する磁束は $\pi r^2 B_s$ と \circ ける。一方、周りにコイルがないソレノイドの $\mathbf{k} \perp \mathbf{n}$ ではこれと同じ 4 の磁束が $\mathbf{31}$ 方向に流出して行くはずである。 \mathbf{Am} の \mathbf{n} 面を \perp して $\mathbf{31}$ 方向 $\mathbf{k} \perp \mathbf{n}$ 1 流出する磁束の合計は、

$$\int_0^\infty 2\pi r B_r(r, z) dz \quad (2.1.10)$$

と \circ ける。この両者は等しくなければいけない。端の磁場として、 $\mathbf{31}$ 方向の流出分を積分して考えることにすれば、結局その大きさは

$$B_{r-edge} = \int_0^\infty B_r dz = -\frac{1}{2} r B_s \quad (2.1.11)$$

と \circ ける。これより、ビームに対するキックは以下の様になる。

$$\Delta x' = -\frac{B_r \sin \theta}{B\rho} = -\frac{B_s}{2B\rho} y, \quad \Delta y' = \frac{B_r \cos \theta}{B\rho} = \frac{-B_s}{2B\rho} x \quad (2.1.12)$$

$B\rho = E(\text{GeV})/0.3$ は magnetic rigidity である。ここで重要なことは、 $B_r \propto r$ を \mathbf{p} たす $\mathbf{31}$ 方向磁場による $\mathbf{8}$ りが、 $\Delta x' = -Ay$ 、 $\Delta y' = Ax$ を \mathbf{p} たすということである。

(ii) スキュー 4 極電磁石によるマッ C ング D について

次に、平たいビームを \mathbf{E} (\perp) に変換する方法について述べる。リングをまわるビームの垂直方向のエミッタンスが \mathbf{B} ? である場合、ビームの中の \wedge 意の * 子の T 期 $\mathbf{h i}$ は $\alpha_x = \alpha_y = 0$ として

$$x = \sqrt{2\beta_x J_{xn}} \cos \varphi_{xn}, \quad x' = -\sqrt{\frac{2J_{xn}}{\beta_x}} \sin \varphi_{xn}, \quad y = 0, \quad y' = 0 \quad (2.1.13)$$

と \circ ける。ここで、 α 、 β は $\mathbf{t q}$ イスパラメータ、 J はベータ \mathbf{t} ? $\mathbf{n r 3}$ の \mathbf{r} 幅 (作用変数)、 φ はその位相である。* 子 \mathbf{s} の \mathbf{t} え \mathbf{u} を \mathbf{n} とする。これは、平たい (直線 (\perp)) ビームを表す。スキュー 4 極電磁石とは $\mathbf{g} =$ の 4 極電磁石を 45 度 \mathbf{j} けた電磁石であり、その 45 度 \mathbf{j} いた $\mathbf{h i}$ 系でビームを見直すと、同じビームは \mathbf{j} いた $\mathbf{h i}$ で

$$\tilde{x} = \tilde{y} = \sqrt{\beta_x J_{xn}} \cos \varphi_{xn}, \quad \tilde{x}' = \tilde{y}' = -\sqrt{\frac{J_{xn}}{\beta_x}} \sin \varphi_{xn} \quad (2.1.14)$$

と見える (図 2.1.21)。 \mathbf{j} いた $\mathbf{h i}$ ではスキュー 4 極電磁石は $\mathbf{g} =$ の 4 極電磁石として \mathbf{r} る \mathbf{v} う。マッ C ング D のオプティクスとして、スキュー 4 極電磁石 (この $\mathbf{h i}$ 系では $\mathbf{g} =$ の 4 極) で水平方向と垂直方向のベータ \mathbf{t} ? $\mathbf{n r 3}$ の位相の進みに \mathbf{w} 度 90 度の $\mathbf{!}$ を \mathbf{x} けてやることにする。その様なマッ C ング D

31 方向磁束を積分

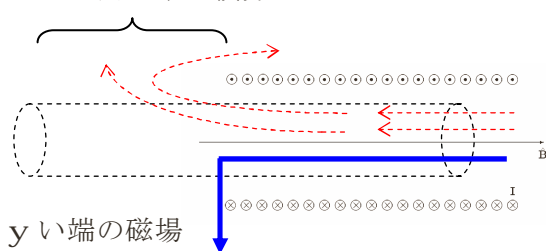


図 2.1.20 “y 端”の近 z によるソレノイド。

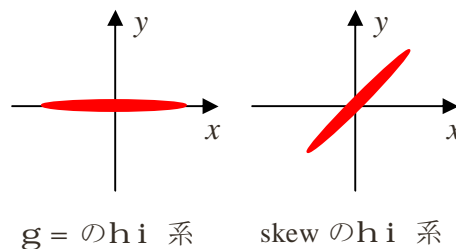


図 2.1.21 h i 系を j ける。

により、*子の h_i は以下の様にG{される。

$$\tilde{x}_2 = \sqrt{\beta_{x2} J_{xn}} \cos(\varphi_{xn} + \Delta), \quad \tilde{x}' = -\sqrt{\frac{J_{xn}}{\beta_{x2}}} \sin(\varphi_{xn} + \Delta), \quad (2.1.15)$$

$$\tilde{y}_2 = \sqrt{\beta_{x2} J_{xn}} \cos(\varphi_{xn} + \Delta + 90^\circ) = -\sqrt{\beta_{x2} J_{xn}} \sin(\varphi_{xn} + \Delta) \quad (2.1.16)$$

$$\tilde{y}'_2 = -\sqrt{\frac{J_{xn}}{\beta_{x2}}} \sin(\varphi_{xn} + \Delta + 90^\circ) = -\sqrt{\frac{J_{xn}}{\beta_{x2}}} \cos(\varphi_{xn} + \Delta) \quad (2.1.17)$$

ここで Δ は水平方向のベータ? $\ln r$ 3の位相の進みである。すなわち、 $x = r \cos \theta$ 、 $y = -r \sin \theta$ 、 $x' = r' \sin \theta$ 、 $y' = r' \cos \theta$ という形になり、T期(Hとして平たかったビームが、形は丸く、234はF線方向だけを向いた(H、すなわち回GするE(になったことが分かる。E(のビームでは234が $x' = -Ay$ 、 $y' = Ax$ をpたしている-、ソレノイドの端による8りを用いればこの回GをMめることができる。

Eの回GをMめる-のソレノイドのKさを|める。

$$\tilde{x}'_3 = -\sqrt{\frac{J_{xn}}{\beta_{x2}}} \sin(\varphi_{xn} + \Delta) + \frac{B_s}{2B\rho} y = -\sqrt{\frac{J_{xn}}{\beta_{x2}}} \sin(\varphi_{xn} + \Delta) \left(1 + \frac{\beta_{x2} B_s}{2B\rho} \right) = 0 \quad (2.1.18)$$

より(垂直方向でやっても同様)、

$$B_s = -\frac{2B\rho}{\beta_{x2}} \quad (2.1.19)$$

となる。この場合、ビームサイズは $\sigma_x = \sigma_y = \sqrt{\epsilon_x J_x} = \sqrt{\epsilon_x \beta_{x2}} / \sqrt{2}$ であり、ビームは完全平行となる。なお、垂直方向のT期 h_i も考Zに入れて同じ計算を行うと、ソレノイドの中でのビームサイズは、

$$\sigma_x = \sigma_y = \sqrt{\frac{\beta}{2} (\epsilon_x + \epsilon_y)}, \quad (2.1.20)$$

$$\sigma_{x'} = \sigma_{y'} = \sqrt{\frac{2\epsilon_y}{\beta}} \quad (2.1.21)$$

となる。ここで、 ϵ は各方向のT期自然エミッタンス、 β はソレノイド入りLにおける $\beta = \beta_x = \beta_y$ である。3GeVのリングの場合、 $B\rho = 10$ [Tm]である-、ソレノイド入りLの β を10mとすると、必要なソレノイド磁場は2T、T期水平エミッタンスを1nmradとし、カップリング(T期垂直エミッタンス)が十分小さいとすれば、ソレノイドの中ではビームは半l約71 μ mの丸い、ほぼ完全に平行なビームとなる。}り~すが、ビームサイズを小さくする-には、ソレノイドの中に追加の集束系を設置することが必要である。

4. • 体的にリングに挿入する場合のラティス例

線形の $\epsilon \bullet$ でビームの23を考える場合、リングのあるD分を=った後の*子の h_i は、入りLの h_i を表すベクトルにG{行、をかけたものになる。局所的な変換を、リングの他のD分に影"を与えないものとし、同時にfイ,,ミックアパーC...の9:を†N-には、そのD分のG{行、を数学的に†等行、とする必要がある。•体的にそうする-には、水平と垂直の両方向に対して変換の出入りLのトqイスパラメータを等しくし、変換内Dのベータ? $\ln r$ 3の位相の進みを^ (の整数倍)とすればよい。

• 体的なラティスの例を図 2.1.22 に示す。ただし、ソレノイドの中の追加集束系と挿入光源の影" は考 Z に入れていない。

スキューによるマッCングDに常%oXの4極電磁石を用いる場合、位相を進めるのに十分な磁場S< とE• を確Zする- にはソレノイドの出入りLのそれ• れに対しておよそ10m程度のD分が必要である。また、+• モジュールとソレノイド(内Dに追加集束系と挿入光源)に10mを考えれば、この変換には合計でおよそ30mの直線Dが必要だということになる。全て' %oXの電磁石で構成すれば、このE• はもっと' “ できるであろうと思われる。

5. 現(における”題と問題点

最後に、リングに実機を挿入するまでに解• しなければいけない問題点について述べる。' %oXソレノイドの中にどのような挿入光源が設置できるかについては検討が必要であるが、> エネルギー加速器の場合、X線を発生させる- には- らくL1の小さな挿入光源が必要であり、- ー難しいであろうと思われる。また、~ 収! をSめ、高次#の影" や誤! の影" についてTMべる必要がある。特にリングの他の場所で垂直方向のビームサイズが大きくなってしまわない- には最大限の注意が必要である。また、ソレノイド内に設置する挿入光源や、ビームサイズを小さくする- に必要な追加集束系の影" についても、詳しく計算する必要がある。(これらはベータ? ンr 3していない完全平行ビームに対しては特に問題なくs> 可能であるので、非線形磁場や誤!、T期垂直エミッタンスの影" が問題である。) さらに、入射ビームはソレノイドの中で大きく広がる(まずはoeになる)-、ソレノイドのL1によっては問題となる。場合によってはパルス4極を多段に設置するなど、入射ビームのr 3をそもそも小さくUえる• 夫が必要であろう。

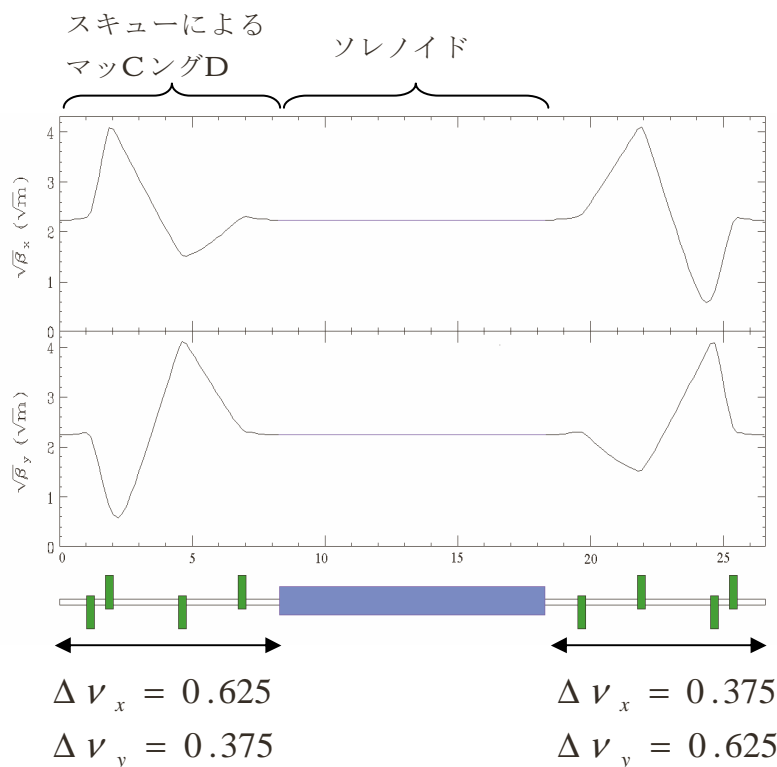


図 2.1.22 • 体的なラティスの例。

水平方向と垂直方向で、マッCングD分のCューンの進みに0.25の!をxけ、かつ変換全体では両方向ともCューンが1だけ進む様にしたオプティクス。ソレノイド前後でスキュー4極電磁石の極性をZ Gさせ、オプティクスをY換する。

この法は、放射光1の用についておかれた; c [7]がきっかけで、放射光学会主催のワークショップで注目された。まだ実際にリングに挿入された実ではなく、ライブラックを使ったビームスタディが行われているところである。[8-9]

原田S © (KEK・PF・放射光源)

参考文献

- [1] Ya. Derbenev, “Adapting Optics for High Energy Electron Cooling”, UM HE 98-04, University of Michigan, 1998.
- [2] Ya. Derbenev, “Advanced Optical Concepts for Electron Cooling”, NIM-A, 441, p.223, 2000.
- [3] A. Burov and S. Nagaitsev, “Courant-Snyder Parameters of Beam Adapters”, FERMILAB-TM-2114, June, 2000.
- [4] A. V. Burov and V. V. Danilov, “An Insertion to Eliminate Horizontal Temperature of High Energy Electron Beam”, FERMILAB-TM-2043, March, 1998.
- [5] Don Edwards, “Notes on the Production of Flat Beams”, March, 2000.
- [6] R. Brinkmann et al., “A Flat Beam Electron Source for Linear Colliders”, TESLA Note 99-09, April, 1999, 他に Proc. of EPAC 2000, pp. 453-455.
- [7] R. Brinkmann, “APPLICATION OF FLAT TO ROUND BEAM TRANSFORMATION FOR RADIATION SOURCES”, Proc. of EPAC 2002, pp. 653-655.
- [8] D. Edwards et al., “The Flat Beam Experiment at the FNAL Photoinjector”, Proc. of LINAC2000.
- [9] D. Edwards, “STATUS OF FLAT ELECTRON BEAM PRODUCTION”, Proc. of PAC 2001.

2.1.2.4 エミッタンス制御により得られる光のコヒーレンス特性

前節で得られたエミッタンス変換の式より、 $\epsilon_x \gg \epsilon_y$ という条件下では

$$\sigma_x = \sigma_y \approx \sqrt{\frac{\beta \epsilon_x}{2}} \quad \sigma'_x = \sigma'_y = \sqrt{\frac{2\epsilon_y}{\beta}} \quad (2.1.22)$$

という近ざりが成り立つ。したがって ϵ_y を小さくすると、ビームの角度発散は小さくなって平行化されるが、ビームサイズはほとんど変わらない。例として、PFの新光源の場合($\epsilon_x = 1$ nmrad、 $\epsilon_y = 0.1$ pmrad)、 $\beta = 4$ m とすると

$$\sigma_x = \sigma_y \approx \sqrt{\frac{4 \times 1 \times 10^{-9}}{2}} = 45 \mu\text{m} \quad (2.1.23)$$

$$\sigma'_x = \sigma'_y = \sqrt{\frac{2 \times 1 \times 10^{-13}}{4}} = 0.22 \mu\text{rad} \quad (2.1.24)$$

となる。長さ 5 m のアンジュレーターから放射される 8 keV の光子の自然サイズ σ_r と自然角度発散 σ'_r は、それぞれ、 $\sigma_r = 3.13 \mu\text{m}$ 、 $\sigma'_r = 3.94 \mu\text{rad}$ である。したがって、空間的にコヒーレントな光を得るという観点からすると、この場合、電子ビームを必要以上に平行化していることになる。コヒーレント成分の割合を増やすには、収束系を追加してビームサイズを小さくすることが必要である。

次に、コヒーレント成分の割合 P_c とビームサイズ σ の β^a 存性を見ることにする。図 2.1.23 は、ソレノイド中に設置した長さ 5 m のアンジュレーターから放射される、8 keV の X 線に関して計算した結果である。なお、リングのパラメーターは $\varepsilon_x = 1 \text{ nmrad}$ 、 $\varepsilon_y = 0.1 \text{ pmrad}$ としている（ちなみに、 $\varepsilon_y = 1 \text{ pmrad}$ としてもほぼ同じ計算結果が得られる）。このグラフより、 β が 0.2 m 以下の時、 σ は $10 \mu\text{m}$ 以下となり、 P_c は 10% 以上となることがわかる。これは ERL 光源の場合とほぼ同じ値である。したがって、もしこの技術が実現すれば、ERL 光源で得られる光と同等の光を一般的な高輝度光源においても局所的に作り出すことができるようになる。

平野馨一（KEK・PF・放射光科学）

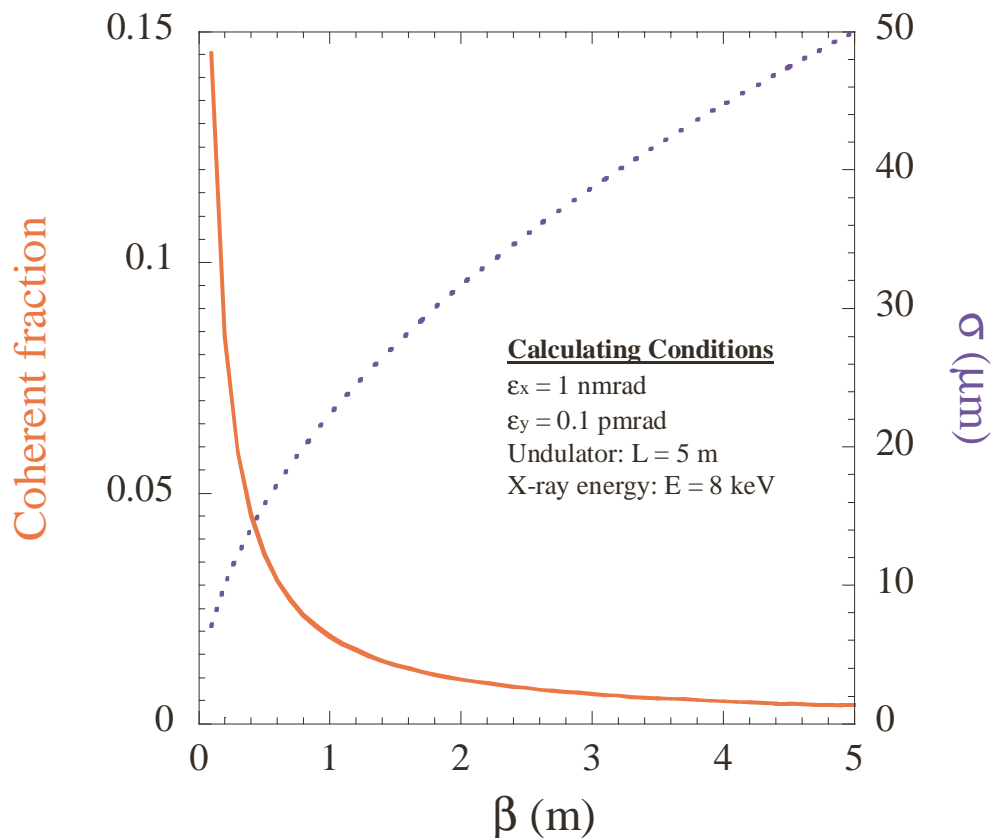


図 2.1.23 コヒーレント成分の割合とビームサイズの計算例。

2.1.2.5 コヒーレンス利用研究の展望

現在検討されている PF の新光源には次のような三つの面があり、いずれもコヒーレンス利用研究の発展に大きく寄与するであろうと考えられる。

(a) 新第三世代光源

PF の新光源では、光源のサイズが SPring-8 より小さくなるため、空間的コヒーレンスが向上する。これにより、従来の位相型顕微鏡や位相型イメージングにおいて、空間分解能やコントラスト等を改善することができる。

(b) 新第三世代光源「エミッタンス制御技術

従来の放射光源では、光源が扁平な形をしていたため、水平方向と垂直方向で空間分解能が異なるという問題があった。しかし、ソレノイドとスクュー4極電磁石によるエミッタンス制御で丸いビームが得られるようになれば、特にスリット等でビームを整形するまでもなく、水平方向と垂直方向で等しい空間分解能が得られるようになる。ただしこの場合、水平方向のビームサイズは小さくなるが、垂直方向のビームサイズは大きくなるため、コヒーレントフラックスの増大はほとんど見込めない。

(c) 新第三世代光源「エミッタンス制御技術」追加収束系

追加収束系で電子ビームのサイズを ERL 光源と同じくらいにまで小さくすることができれば、ゾーンプレート、屈折レンズ、KB ミラー等の集光素子により、水平・垂直両方向で回折限界集光を実現することができるようになる。さらに、こうして得られた、 γ 線ビームを γ 線顕微鏡、微小領域の X 線分光、単分子イメージング等に用することができるようになる。

さて、(a)~(c)の実現可能性について考えると、(a)はすでに実現されているので特に問題はないと思われる。しかし、(b)と(c)については先例がなく、様々な問題や困難が予想されるので、今後注意深く検討する必要がある。しかし、もし実現されれば、ERL 光源で得られる光と同等の光を一般的な高輝度光源においても局所的に作り出すことができるようになるので、PF の将来計画に限らず世界の放射光施設の将来計画に：「なから±影」を及ぼすことになるであろう。

コヒーレンス利用研究には様々なものがあるが、最近特に注目を集めているのは、位相型 X 線イメージング、X 線コヒーレント回折顕微鏡、X 線光子相関分光法である。これらの研究は、少なくとも(a)が実現されれば、いずれも相の発展を見込むことができる。しかし、X 線コヒーレント散乱顕微鏡による単分子イメージングを目指すには、(b)と(c)の技術を実現することが必要である。以下では、これらの研究の展望について概観する。

1. 位相型 X 線イメージング

位相型 X 線イメージング研究に関しては、³ から X 線 X 線グラフィー等の研究が地道に行われてきたが[1]、特に 1990 年代後半以降、新しい技術が急速に発達しつつある[2]。その代表的な例が、X 線干渉計撮像法[3]、X 線角度分解撮像法[4]、X 線 μ 3 % 撮像法[5]である。これらの位相型 X 線イメージングでは X 線の位相情報を利用して像を得るため、X 線の強度情報から像を得る従来の X 線コントラストイメージングと比べて、 μ 3 % 度が低い。そのため、従来は観測することができなかった試料でも観測することができ、また、試料 1 の μ 3 % 射線 4 を大幅に μ 3 % らすことができる。

X 線干渉計撮像法、X 線角度分解撮像法、X 線 μ 3 % 撮像法という三つの撮像法のうち、空間的コヒーレンス（微小光源）を特に必要とするのは X 線 μ 3 % 撮像法である。X 線干渉計撮像法と X 線角

度分解撮像法では、空間的コヒーレンスは必ずしも必要ではない。そのため、X線 μ CT撮像法の研究は ESRF のような第三世代放射光施設で行われており、他方、X線干渉計撮像法とX線角度分解撮像法の研究は PF や NSLS のような第四世代の放射光施設で行われている。したがって、PF の新光源で空間的コヒーレンスが向上した場合、その第一に上げるのはX線 μ CT撮像法であろう。X線干渉計撮像法とX線角度分解撮像法に関しては、空間的コヒーレンスが向上することによるメリットはあまりないと思われるが、輝度が向上することにより時間分解能（撮影時間）の改善を図ることができる。

そこで以下では、X線 μ CT撮像法について簡単に紹介することにする。典型的な実装置を図 2.1.24(a)に示す。アンジュレーターまたは微小焦点X線発生装置からのX線を分光器で単色化した後、試料に入射させる。するとX線は試料によって回折されるので、その回折像を検出器の位置を変えながら観測し、逆フーリエ変換法を用いて位相マップを計算する。試料の三次元位相像を得るには、試料を回転させながら各投影方向で位相マップを計測する。その後は通常のCT像再生アルゴリズムで再構成像を得ることができる。図 2.1.24(b)はそのようにして得られた三次元位相像である[5]。

空間的コヒーレンスが高くなれば、第一に像のコントラストが改善されることになる。次に、集光素子を用いて大口径光学系を組んだ時に得られる空間分解能についても、現在は数百 nm であるが数 nm ~ 数十 nm に改善することも可能であろう。さらに、光源の高度化・集合化により、例えば特定元素のマッピングも行えるようになる可能性がある。すでに、検出器近傍で異常散乱電子を測定した例もあり[6]、これをさらに進めれば特定元素の三次元分析を得られるようになると思われる。

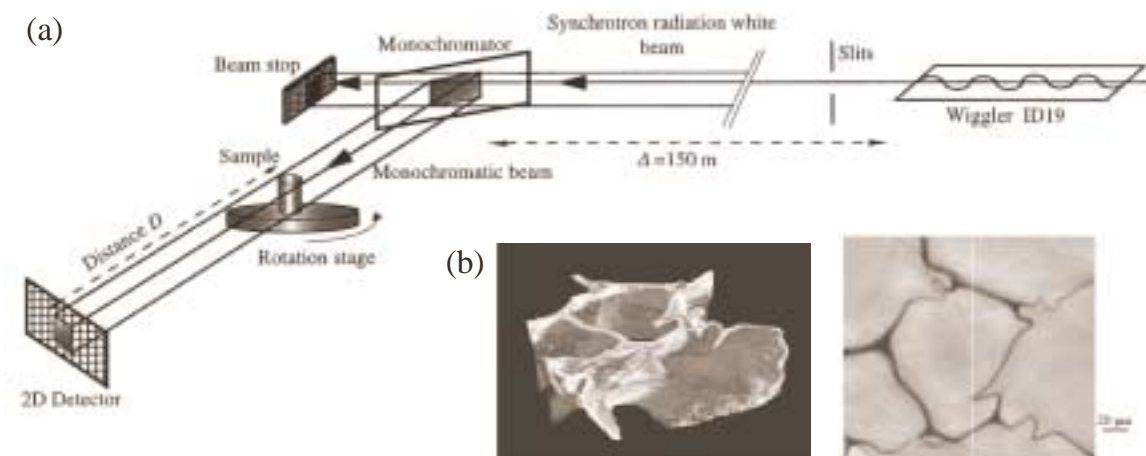


図 2.1.24 X線 μ CT撮像法 [5]

(a) 実装置の例 @ ESRF ID19 (b) 発光素子の位相像。

2. X線コヒーレント回折顕微鏡

コヒーレントなX線が周期を持たない試料や、ノ結晶 \hat{I} などに入射すると、遠方で連続的な回折 \hat{I} 様(ブラウン \hat{I} ーフ \hat{D} 一回折像)を生じる。この回折 \hat{I} 様を、イキスト周 μ 数以上の周 μ 数で観 \hat{O} し、位相回 \hat{A} アル \hat{A} リズムを用いて試料像を再生する)法がX線コヒーレント回折顕微鏡である。これについては、2年前に出版された「放射光将来計画検討報告 — ERL光源と利用研究 —」[7]の2.2.5節ですでに詳しく述べられているが、その後も著しく発展を遂げているため、ここでも取り上げることにする。

X線コヒーレント回折顕微鏡の可能性は最T Sayreによって1952年に \hat{N} され[8]、1999年にMiaoらによって実 \hat{O} された[9]。しかし、Miaoらが行った実 \hat{A} では、コヒーレント散乱のデータのみから試料像を再生したわけではない。実は、 f イレクトビームストッパーで \hat{O} けてしまった回折像の中 \hat{O} D分のデータを、他の)法で得た>分解能のデータで \hat{s} っていたのである。この問題は、その後、HiOアル \hat{A} リズムに改良を加えたShrink-wrapアル \hat{A} リズムの登場により解 \hat{O} された[10]。図2.1.25(a)はALSのビームライン9.0.1で行われた実 \hat{A} の \hat{O} 置図である。 μ 長2.1nmのコヒーレント \hat{O} X線を直 \hat{I} 50nmの \hat{O} のクラスタに入射させ、その回折像をX線CCDカメラで観 \hat{O} する。図2.1.25(b)は得られた回折像であるが、中 \hat{O} のデータが f イレクトビームストッパーのせいで \hat{O} けているのがわかる。この不完全な回折像からShrink-wrapアル \hat{A} リズムにより再生されたのが図2.1.25(c)である。SEMで得られた像と比較すると、ほぼ完全に試料像が再生されているのがわかる。

X線コヒーレント回折顕微鏡は周期を持たない試料だけでなく、 \hat{O} ノ結晶 \hat{I} の観 \hat{O} にも用いられている。 \hat{O} ノ結晶 \hat{I} にコヒーレントX線が入射すると、回折像は回折点を中 \hat{O} としてほぼ連続的に広がることになる。RobinsonらはAPSで実 \hat{A} を行い、この回折像から \hat{O} ノ結晶 \hat{I} の \hat{k} 形を再生することに成 \hat{O} した[11]。この)法をさらに発展させれば、 \hat{O} ノ結晶 \hat{I} 内の \hat{O} や \hat{U} み場の観 \hat{O} 、 \hat{U} 的に \hat{Y} んだ \hat{P} もれた4子ドットの観 \hat{O} なども可能になると考えられる。

さらに、X線コヒーレント回折顕微鏡の高度化 \hat{O} 合化も \hat{B} されている。これまでは試料の電子 \hat{a} 度分 \hat{Y} しか得られず、 \hat{A} 素を \hat{a} 別することはできなかったが、 \hat{O} 収端近 \hat{E} の異常分散を利用すれば、特定 \hat{A} 素の三次 \hat{A} 分 \hat{Y} も得られるようになるであろう。この可能性を検 \hat{O} するためにシミュレーション \hat{Y} ンが行われた[12]。図2.1.26(a)は計算に用いられたテストパターンである。 \hat{a} 、 $\hat{\beta}$ 、 \hat{a} の \hat{j} uは \hat{O} 原子からできており、それ以 \hat{k} の \hat{D} 分はシリコン原子からできている。図2.1.26(b)はこのテストパターンからの回折像をLogスケールで \hat{P} ットしたものである。図2.1.26(c)は位相回 \hat{A} アル \hat{A} リズムにより再生された試料像である。 \hat{O} の \hat{O} 収端近 \hat{E} の $\hat{4}$ つのエネルギー(2091eVと2194eV)で試料像を再生し、さらに計算 \hat{a} 理を \hat{O} すことにより、図2.1.26(d)のように \hat{O} 原子の \hat{a} 度分 \hat{Y} を得ることに成 \hat{O} した。このシミュレーション \hat{Y} ン結果はX線コヒーレント回折顕微鏡の新たな可能性を示 \hat{a} するものと \hat{O} える。将来的には \hat{A} 素の \hat{a} 別だけでなく、化学(\hat{H} の \hat{a} 別や磁性電子の \hat{a} 別等も可能になるかもしれない。

X線コヒーレント散乱顕微鏡の究極的目 \hat{i} は単分子イメージングである[13]。これにより、従来は結晶 \hat{I} 化することができなくて構 \hat{a} eを解けなかったタンパク質でも構 \hat{a} eを解けるようになる。もしこの \hat{O} 大な目 \hat{i} が達成されれば、放射光科学のあり方を \hat{e} 本から変える画期的なものとなることは間 \hat{e} いない。おそらくノーベル \hat{e} にも値するであろう。現在、LCLSやTESLAといったX線自由電子レーザー(XFEL)を計画している \hat{O} 設では、単分子イメージングに向けた取り \hat{O} み \hat{O} が \hat{e} \hat{O} になされているが[14-15]、(1)放射線 \hat{i} \hat{i} 、(2)試料の \hat{i} 備 \hat{i} 取り \hat{I} い方法、(3)高速 $\hat{4}$ 次 \hat{A} 検出器開発など、取り \hat{O} むべき問題が \hat{O} 積している。もしソレノイドと追加収束系でERL光源と同じくらい小さな丸ビームが得られるようになれば、PFの新光源でも単分子イメージングを行えるであろう。その場合、放射線 \hat{i} \hat{i} はあまり問題にはならないが、多数の分子にX線を \hat{O} 射してデータを \hat{n} 積しなければならぬため、試料の \hat{i} 備 \hat{i} 取り \hat{I} い方法の確立が必要になるだろう。

(a)

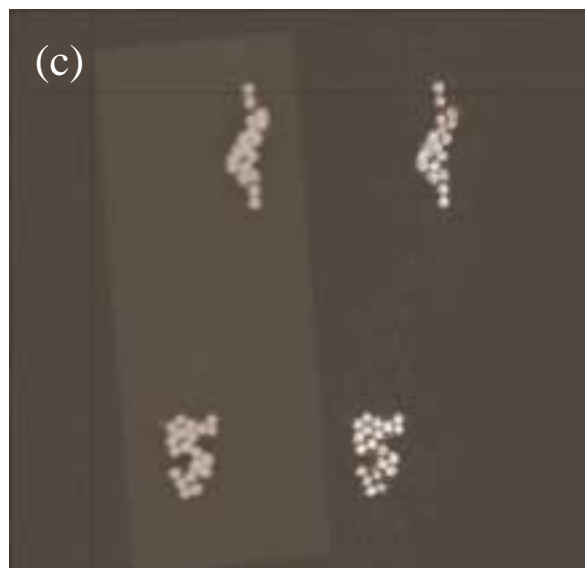
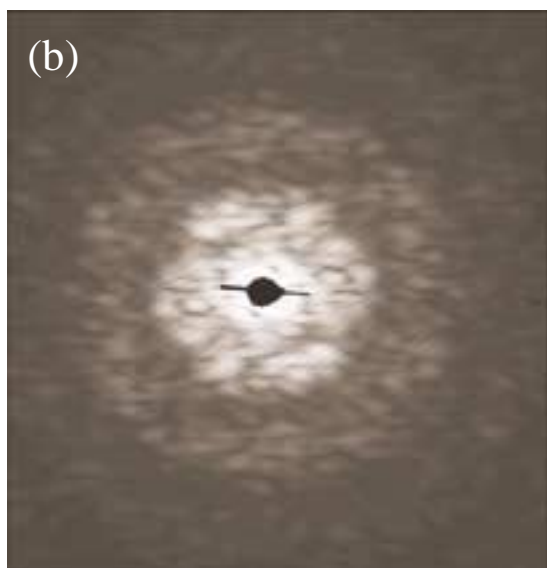
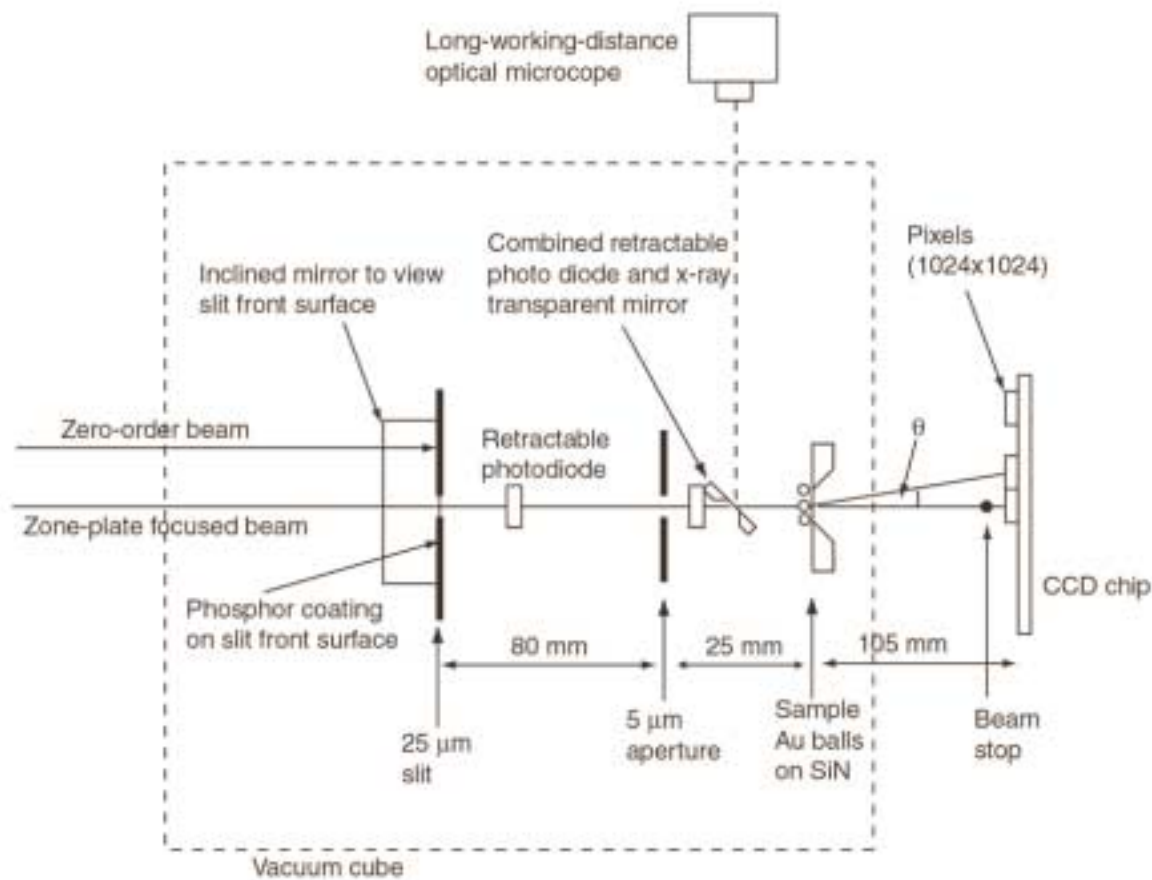


図 2.1.25 ALS のビームライン 9.0.1 で行われた X 線コヒーレント回折顕微鏡実験 [10]
(a) 実験装置図 (b) 実測された中 $\times D$ 分が θ けている回折像 (c) \circ SEM で得られた像、 \circ Shrink-wrap アルゴリズムで再生された像 (試料は直径 50nm の Au のクラスター)

このようにX線によるコヒーレント回折の研究が進みつつある一方で、電子線による研究も進んでいる。たとえば、2003年にZuoらはコヒーレント電子線回折によりカーボン、ノキューブの1/4重層を分けることに成功した[16]。電子線はX線と比べて散乱能が高く、試料1の射線4を小さくUえることもできるため[17-18]、単分子イメージングには電子線の方がIしている可能性もある。他方、試料の内Dを観るにはX線の方がIしているであろう。今後、X線と電子線でどのようにのみ分けを行うのか、注意深く検討する必要があると思われる。

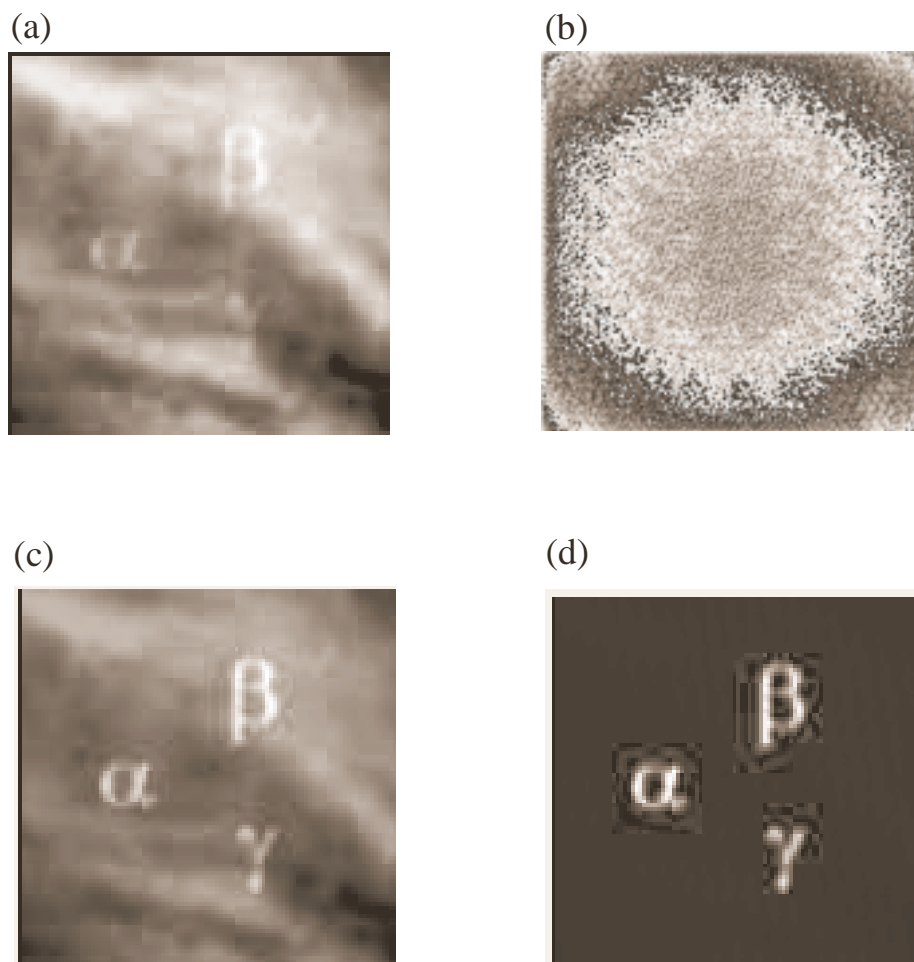


図 2.1.26 X線コヒーレント回折顕微鏡による元素マッピング [12]

(a) 計算に用いられたテストパターン。 α 、 β 、 γ の位置はO原子でできており、それ以外はシリコン原子でできている。(b) テストパターンからの回折像 (Log スケール) (c) 位相回復アルゴリズムで再生された試料像 (d) Oの吸収端近辺の2つのエネルギー(2091eVと2194eV)で試料像を再生し、さらに計算処理をすることにより得られたO原子の位置精度。

3. X線光子相関分光法

X線光子相関分光法はX線の3次の散乱に基づいて行われている。物質に3次の散乱がある場合、それにコヒーレントなX線を射すると、物質の各Dから散乱されたX線の干渉によって散乱強度に散乱強度の相関が生じる。この散乱強度の相関を観測して物質の散乱に関する情報を得る方法がX線光子相関分光法(XPCS)である。XPCSについては、2年前に出版された「放射光将来計画検討報告 — ERL光源と利

用研究一」[7]の2.2.2節で詳しく述べられているので、詳細はそちらを見ていただきたい。PFの新光源が実現すれば、光散乱ではカSーできない長さ領域（およそ1nm～100nmの領域）や、中性子スÉンエコーではカSーできない時間領域（およそ0.1Hz～10MHz）のüýが可能となる。

平野馨一（KEK・PF・放射光科学）

参考文献

- [1] S. Aoki and S. Kikuta : Jpn. J. Appl. Phys., **13** (1974) 1385.
- [2] R. Fitzgerald : Physics Today Vol.53 No.7 (2000) 23.
- [3] A. Momose, T. Takeda, Y. Itai and K. Hirano : Nature Medicine, **2** (1996) 473.
- [4] T. J. Davis, D. Gao, T. E. Gureyev, A. W. Stevenson and S. W. Wilkins : Nature **373** (1995) 595.
- [5] P. Cloetens, W. Ludwig, J. Baruchel, D. Van Dyck, J. Van Landuyt, J. P. Guigay and M. Schlenker : Appl. Phys. Lett., **75** (1999) 2912.
- [6] W.-L. Lee, P. Cloetens and M. Schlenker : Acta Cryst. **A60** (2004) 58.
- [7] 「放射光将来計画検討報告一ERL光源と利用研究一」 編集 諏訪田剛 飯田厚夫、2003年3月、高エネルギー加速器研究機構。
- [8] D. Sayre : Acta Cryst. **5** (1952) 843.
- [9] J. Miao, P. Charalambous, J. Kirz and D. Sayre : Nature **400** (1999) 342.
- [10] H. He, S. Marchesini, U. Weierstall, H. Chapman, S. Hau-Riege, A. Noy and J. C. H. Spence : Phys. Rev. B **67** (2003) 174114.
- [11] I. K. Robinson, I. A. Vartanyants, G. J. Williams, M. A. Pfeifer and J. A. Pitney : Phys. Rev. Lett., **87** (2001) 195505.
- [12] K. Hirano : Trans. MRS-J **28** (2003) 43.
- [13] J. Miao, K. Hodgson and D. Sayre : PNAS **98** (2001) 6641.
- [14] “LCLS the First Experiments”, Ed. by G. K. Shenoy and J. Srohr, Stanford Linear Accelerator Center, Stanford (2000).
- [15] “TESLA Technical Design Report Part V: The X-ray Free Electron Laser”, Ed. by G. Materlik and Th. Tschentscher, Deutsches Elektronen Synchrotron, Hamburg (2001).

[16] J. M. Zuo, I. Vartanyants, M. Gao, R. Zhang and L. A. Nagahara : Science **300** (2003) 141.

[17] J. Breedlove and G. Trammel : Science **170** (1970) 1310.

[18] R. Henderson : Q. Rev. Biophys., **28** (1995) 171.

2.1.3 マイクロビームからナノビームへ

2.1.3.1 硬X線ナノビームの現状と将来

1. Pめに

放射光により実現した新しい技術の一つであるX線集光は、第三世代リングのX線アンジュレータの利用により、ナノビームが実現され、 λ なる微小化に向けて確実な歩みを進めている。

X線マイクロビームによるX線計測技術の開発は、放射光利用の初期から放射光装置技術の主要開発目的の一つとされてきた。1980年代にはX線領域では主に放射光-X線分光を目的とした光学系が開発が、また軟X線領域では生物顕微鏡を主とした軟X線顕微鏡の開発が行われてきた。1990年代は第三世代リングの計画・建設・稼働時期に当たり、第三世代の高輝度特性を生かした新たな硬X線集光光学系の研究・実用化が盛んになった。従来からのX線ミラーやゾーンプレートに加えて、キルpatrick-Baezラリー、屈折レンズなどの実用化が行われた。このようなマイクロビームの性能向上とともに新たな利用研究が発展してきている。X線領域では、化学分析に単結晶構造解析や多結晶体の解析、力分測定などの回折学的)法による解析の展開が行われている。一方軟X線領域では性能的には、既に10年前に100 nmをJするような、ナノビームや100 nm以下のイメージングが実用化されていた。以前は軟X線マイクロビームといえば生物顕微鏡 (water window) がその開発目的であったが、近年は特に高分解能光電子顕微鏡の発展と、材料評価・物性研究の発展が著しく、材料開発に不可欠のものになりつつある。装置技術的には光電子顕微鏡では、ナノビームではなく、Å影型 (非7-型) の進歩が目覚ましい。

放射光X線マイクロビームは、光源の“小像であるので、その性能は光源の特性に大きく依存する。第三世代光源が稼働してから多くの光学系がその性能を発揮し始めた。また現在微小ビームサイズのフロンティアが開拓されているのも第三世代光源の長尺ビームラインの高いコヒーレンスを利用した結果である。硬X線マイクロビーム開発の現状について以下に概観する。

2. 集光技術の現状と展望

ビーム集光技術においてはエミッタンス保存が成り立つので、究極的なビームサイズは光源の性能そのものを原則的には反映している。第二世代リングでは、K度の面から実用ビームサイズが10 μm ~数 μm であり、マイクロビーム技術であった。一方第三世代では容易に数 μm ~0.2 μm 程度が得られ、最近ではビームサイズが50 nm前後の報告が相次ぐようになり、ナノビーム技術が盛んになりつつある。極微小ビームを得るのに、ビームラインのI当な位置にエンリール (スリットなど) を置き、これを仮想光源とした“小像を得ている場合もある。K度の面から高輝度光源が有利である。一方で第三世代X線アンジュレータの長尺ビームラインにおいて高い空間コヒーレンスを用いた成果が出ている。長い間、硬X線領域における最小ビームは1990年代半ばにキルpatrick-Baez法によって得られた50 nmであったが[1]、10年経過して本格的な、ナノビームが得られるようになってきた。集光技術の現状をまとめ、将来の展望を概観する。

X線領域のマイクロビーム集光素子としては2枚の全反射ミラーにより独立に縦横の集光を行うKirkpatrick-Baez(KB)型集光系が最も広く用いられている。ほとんどのミラー形状は楕円面である。楕円

面の形成は精密研磨が代表的な方法であり、大阪大学で開発された EEM(Elastic Emission Machining)による平滑面加工を用いたものでは最近 SPring-8 において 50 nm 以下のビームが得られたことが報告された[2]。一方薄いテーパ型ミラーの非対称弾性変形を用いて楕円形を形成する方法も、特に市販のシステムが供給されるようになってから一般的になってきた。この方法は、ミラー本体が安価 (= 常はシリコン) で、しかもミラーとしては平面であるので、精密平面を容易に形成できる点、またモーメントの掛けかたによりミラー表面形状を制御できる点などに特徴がある。また、楕円形を研磨ではなく表面に堆積の薄膜の厚さの制御により作製する方法が APS で行われており[3]、これも市販される方向である (既に市販されているかどうかは未確認)。KB ミラーでは、EEM 以外にも 100 nm 前後のビームサイズについての報告が既にいくつかある。ここで特徴的なのは、このような性能を達成した実例は、第 3 世代光源の長尺ビームラインにおいて行われているという点である。また、X線ビーム開発においては高輝度光源と高い空間コヒーレンスが重要なことを示している。尚、以前開発が進められていた回折楕円形 X線ミラーは製作の困難さからか sub- μm を目的とした集光光学系として開発されている報告は現在では無い。

広い意味での X線射型光学素子に分類されるテーパ型中空キレラリイは、約 10 年前に 50 nm のビームサイズを達成するという快挙を成し遂げたため大いに注目されていたが、実用的にはむしろ市販のキレラリイを用いて数 μm 程度のビームを得る方向で利用されている。最近 van der Veen のグループは X線光学的な観点から理論的な最小ビームサイズが 10 nm であることを示したが[4]、キレラリイも当然として、X線ビーム形成の有力候補の一つである。

もう一つの代表的集光光学素子のゾーンプレートも、X線領域のみならず硬 X線領域でもその進展は目覚しく、第 3 世代リングではいくつかの設計で 100nm 前後のビームが得られており、低いエネルギー (1-4 keV) では 60 nm の分解能を達成している(APS)。高次光を用いれば sub-nm も視野に入った状況である。

長い開発の歴史を持つ全 X線射ミラーとゾーンプレートに対して、比較的新しい素子である屈折レンズは、より多くの材料の精密加工を目指した努力が払われている。屈折レンズは高エネルギー X線対称性や耐久性などに実用性を見出してきたが、最近 50 nm レベルのビームが得られたという話も聞いている。この分野で特に興味深いのは、 2π の位相シフトに寄与する成分を取り除いたフレネルレンズの開発である[5]。利用する μ 長は限定されるものの、レンズ材料による収差の問題がなくなるため 10 nm 以下の分解能が期待できる。= 常はシリコンにリソグラフィの技術を用いてアスペクト比の高いレンズを作製する。なおブラッグフレネル型の集光素子は ESRF を中心に実用化されているが、他設計では作製の困難さからかあまり使われていない。

各種の光学素子は収差や角度発散などに勿論それぞれ特徴を持っている。分光学的あるいは散乱・回折に最適なものを選定が必要がある。一方で最小ビームを追求する技術開発は必ずしも利用と結びついていないシーズ先行が現状であるが、当面はこの状況が進むと思われる。10 nm レベルの X線ビームを追求するには光学素子のみでなく測定環境や放射線対策、試料冷却、精密位置合わせなどの開発要素が大きく、信頼性の高い有用なシステムを構築するのはこの分野の今後の課題であろう。

近年の関連する国際会議を見ても、キレラリイや屈折レンズ、フレネルレンズの開発がトピックスとして取り上げられる一方で従来型のミラー、ゾーンプレートの開発も着実に進んでいることがわかる。また高性能な光学素子も市販されていることも注目される。集光素子の性能は年々向上し、ほとんど全ての素子が将来的には 10nm の分解能を得る勢いになってきた。Qに、このような開発には第 3 世代以上の光源が不可欠である。また極限ビームを得るには既に述べたように、コヒーレント光が得られるビームラインが必要になっている。一方、ゾーンプレートやキレラリイ、2次楕円形屈折レンズでは同時に2次楕円形集光を行っているので、放射光リングからの非対称形状の X線 (横方向に広がった扁平形状) は望ましくない。縦横対称な「丸いビーム」が期待される場所である。

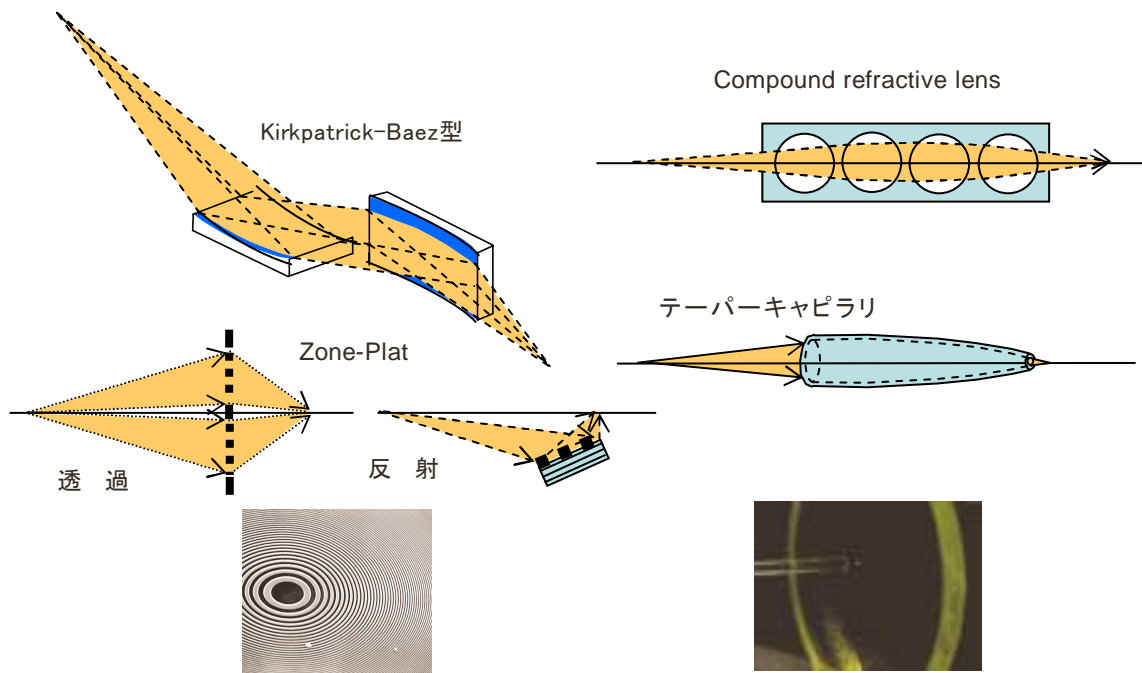


図 2.1.27 各種の集光光学素子。

3. 電子ビームの用途

物質の観察には階一性があるが、7-型電子顕微鏡 (SEM) や7-型プローブ顕微鏡 (SPM) が日常的に用いられるようになり、放射光利用の評価技術にもこれらのプローブで得られる情報に対する情報が得られることが期待されている。多くの電子ビームの開発は現時点ではシーズが先行しているようにみえるが、一般的にはこのようなニーズを背景として開発が進められていると理解できる。ここでは、用面を重視して、より一般的な数 μm 以下のX線プローブの利用研究を概観する。

硬X線マイクロビームの開発経緯や非破壊分測の特徴から、電子ノ (マイクロ) ビームの先端的な例は - 光X線分測の分野からPまることが多い。生物学的 (環境) 試料の分測が多く、sub- μm ビームにより対しては細胞内 \hat{A} 素分Yが得られるようになってきている。光子 \hat{a} 度が上昇した場合には \gg 射i íの問題が大きく、分測電顕などで使用されている試料+, などの技術のX入も必要になってくる。また鉱物材料 (地球科学、宇宙科学) の試料の分測も多い。テクノ? ジーに関係した材料の分測は今のところあまり多くは無いが、ビームの微小化に伴う諸問題を考えると今後発展が期待できる。

一方マイクロビームのXAFS 1の用途は岩石中の鉱物の (H分測などが行われているがこれまであまり用途は活発でない。極限まで集光されたX線電子ビームは \hat{z} 自体を擾乱する可能性があるため、 \hat{A} 影型のイメージング) 法 (PEEM など) を相 \hat{s} 的に利用することが重要になるとと思われる。今後のシステムでは: なくてもXAFSやXRF \hat{A} 素分測の \hat{E} 合化が必然である。

X線回折・散乱法 1の用途は第2世代光源の時代から進んできた。数マイクロメートルのビームを用いるマイクロビームでは微結 \hat{I} や微小領域の結 \hat{I} 構 \hat{a} 解 \hat{e} が進んでいる。回折実 \hat{A} におけるビーム微小化 (集光)の問題点は、集光光学系に伴う角度発散の増加と微小領域における高精度な角度制御にある。Laue法や積分K度の利用、あるいは特殊な集光系 (非対称 \hat{z} 射) などが採用されている。最近のト \hat{E} ックスは、多結 \hat{I} 材料評価 (力、 \hat{c} 向など) 1のsub- μm ビームの利用で、多結 \hat{I} を構成している個々の結 \hat{I} *を評価する立場から様々な \hat{c} 夫がされている。単一繊維や高分子材料の小角散乱の解 \hat{e} はESRFでT期から行われている分野であるが、測定の性格上からか極端に絞ったビームの利用は志向していないように見える。X線マイクロビームのX線回折散乱 1の用途は、分光学的な利用ほど単純ではないが、空間的変 \hat{M} 構 \hat{a} の解 \hat{e} や鉱物の微細構 \hat{a} に現れる鉱物の成 \hat{E} ・履歴の研究、 \hat{c} 高圧・高温下での物質構 \hat{a} 研究

などが期待できる。

以上は縦割り（研究）法での、ノブ？ープ用の概観であるが、むしろ他の放射光法、特にイメージング法などとCみ合わせるによりその有用性が明確になると考えられる。、ノサイエンス・、ノテクノ？ジエ分野では多くの評価法がその性能を競い合っている（Hであるが、放射光の与える情報は、他の）法に比べても独特なものであることは既に広く認められている。放射光、ノビームは、ノスケールのサイエンスとテクノ？ジエにアプ？ーCするのに最Iな方法であり、局所領域におけるA素分@、局所構æ評価、電子（H評価、原子構æ評価がE合されたときにはK力なツールを与える。pに、ノビームの情報にコヒーレント光源を用いたX線イメージングの新）法や結像型の光電子顕微鏡による情報をCみ合わせるにより、全く新しい放射光利用技術の展開が可能になる領域と考えられる。このような先端的な局面以kでも、、ノスケールの電子（H・構æ情報がE合的に得られることは重要な展開と考えられる。

飯田厚夫（KEK・PF・放射光科学）

参考文献

- [1] D. H. Bilderback et al. Science 263 (1994) 201.
- [2] 三村秀a 他、第 18 回放射光学会年会 2005.1.9.
- [3] C. Liu et al., AIP Conference Proceedings 705 (2004) 704.
- [4] C. Bergman et al., Phys. Rev. Lett. 91 (2003) 204801.
- [5] C. G. Schroer et al., Appl. Phys. Lett. 82 (2003) 1485.
- [6] G. E. Ice et al., J. Synchrotron Rad. 12 (2005) 155.

2.1.3.2 次世代放射光源の軟 X 線ナノビームとナノテクノロジーへの応用

1. はじめに

ULSI に代表される半X体やハードディスクなどの‘高à度磁気記録媒体においては、^つのデSイスの大きさがすでに、ノスケールに突入している。研究・開発が急EッCで進む情報=信技術を支え、さらに次世代の最先端、ノ材料の研究・開発を進めるには、新物質・材料の、ノスケールでの解@・観°が必要不可Oである。また、現代の情報テクノ？ジエでは単にサイズが小さくなるだけではなく、スEード（CPUの駆3速度、HDDの読み出し）の点でも非常に高速になっており、GHz領域、すなわちEコ秒オーfーでの駆3が必要とされるため、Eコ秒オーfーでの解@も必要となってくる。このような背景の下、、ノ材料の総合的な評価）法として、、ノスケールの空間分解能を持ち、さらに高い時間分解能を持った測定）法の実現がKく望まれている。次世代放射光源の特徴である「、ノビーム」というキーワードから最Tに思い浮かO、ノテクノ？ジエ1の（用）法として、、ノ材料の局所構æ・電子（H解@が挙げられるであろう。

2. 紫外線を用いた顕微分光

紫外線材料の解明・評価という観点から考えると、次世代放射光源から発生する放射光のスポットサイズが、紫外線メートル・スケールであることは、利用者にとっては最も簡単に利用することが出来、非常に有用な光源であると考えることが出来る。なぜなら、= 常の測定) 法では空間分解能はビームサイズに² 依存するため、ビームサイズが小さくなればなるほど微小領域での解明が可能になる。また、紫外線ビームを用いた紫外線材料解明においては、試料を⁷ するステージさえ整っていれば、= 常の放射光の分光) 法 (光電子分光、X線・吸収分光、- 光X線、X線磁気A^{1/4}~ 性など) や測定装置をそのまま用いて顕微分光測定を行うことが出来る。このためエネルギー分解能などを犠牲にすることなく、紫外線メートルの空間分解能での解明・観測が可能になる。このような観点から考えると、紫外線ビームは紫外線材料の解明にとって非常に大きな^{1/2}をもたらすであろう。その他にもX線顕微鏡など¹ 用する場合についても、特殊な集光光学系をセットアップする必要がなく、^{AE}大・結像のための光学系を用意すれば可能となるため、エネルギーを変化させたときの集光光学系の⁷ 収! (ゾーンプレートなどでは焦点^{CE}・が^μ長に² 依存するため) をなくすることが出来、nano-XAFSなどの顕微分光などにとっても有用である。

また、パルスレーザなどと放射光を同期させることにより、時間分解測定も可能となる。このような、^E コ秒オー^f での時間分解能かつ、紫外線ビームを用いた実^Aが可能となることによって、最先端の物性実^Aが可能になる。たとえば、紫外線磁性体の磁化の歳! ²³などの^fイ、ミクスを詳細に研究することが出来るようになり、⁴子コン^Eュータなどの次世代のテクノ? ジーのブレークスルーに大きく寄与することが出来ると思われる。また、次世代デ^Sイスについて産業界が要|している、¹⁰ nm ・ ¹⁰⁰ ^E コ秒の分解能での材料分^⑧も可能になる。

3. 光電子顕微鏡によるイメージング

光電子顕微鏡では試料から放出される光電子像を^{AE}大、結像する。前述した紫外線ビーム⁷による顕微分光と比較したときの光電子顕微鏡の利点として、結像型であるため視野全体の像を観測することが出来ることが挙げられる。このため実時間で観測が可能である。また、ビームのコヒーレンスは必要なく、単位面積あたりの光子数が重要である。光電子顕微鏡の場合は対象とする試料に^じた視野の大きさを選択し観測を行う。このため、小さい視野のみが必要というわけではなく、視野をある程度の大きさ (¹⁰⁰ μm 程度) から微小領域観測 (¹⁰⁰ nm)まで変える必要がある。このため、紫外線ビームを光電子顕微鏡に^用するためには、ビーム^lを ¹⁰⁰ μm ~ ¹⁰ nm 程度まで変化させることが出来るような分光光学系を考える必要がある。さらに、前述したようにパルスレーザと放射光とを同期することにより、光電子顕微鏡を用いた^E コ秒時間分解能での観測も可能である。さらに、¹ パルスあたりの光^K度が十分に^Kければ、現(ビデオレート (³³ msec) で行っている実時間観測を放射光の⁷り~し周^μ数のマイク?秒から、紫外線秒の時間分解能での実時間観測を行うことが出来るようになると期待される。

最近では光電子顕微鏡の励起光に硬 X 線を用いることにより、紫外線メートルスケールの微小領域の XAFS (nano-XAFS) や^Pめ込まれた界面、^ノ構^æの可視化が可能であることが分かってきた。次世代放射光源を用いることによって、より高い空間分解能、より^い時間分解能を実現することが可能になり、新しいサイエンスを^Jり開くことが出来るようになると期待している。