

## 2.2 X線の位相やコヒーレンスを利用する研究

### 2.2.1 総論

次世代光源である ERL の大きな特徴の一つは、垂直方向だけでなく水平方向についても回折限界に近いコヒーレントなX線が得られることである。例として、PFで検討されている ERL と SPring-8 との比較 (E = 8 keV) を表 2.3 に示す。

表 2.3: E = 8 keV における、PF-ERL と SPring-8 の比較

ここでは PF-ERL のエミッタンスを  $\varepsilon_x = \varepsilon_y = 10$  pmrad とした。30m-undulator のパラメータは、 $\lambda_u = 1.6$  cm、 $N = 1875$ 、 $\beta_x = \beta_y = 20$  m、5m-undulator のパラメータは、 $\lambda_u = 1.6$  cm、 $N = 312$ 、 $\beta_x = \beta_y = 5$  m である。なお、PF-ERL のパラメータはまだ確定しておらず、ここに挙げた値は目標値である。

		PF-ERL undulator @ 5 GeV		SPring-8 undulator @ 8 GeV	
Beam current		100 mA	100 mA	100 mA	100 mA
Undulator length		30 m	5 m	25 m	5 m
Source size ( $\mu\text{m}$ )	horizontal	37.8	18.2	892	892
	vertical	37.8	18.2	22.8	10.6
Source div. ( $\mu\text{rad}$ )	horizontal	4.1	9.8	37.4	38.4
	vertical	4.1	9.8	4.3	10
Beam size @ 50 m ( $\mu\text{m}$ )	horizontal	244	510	2761	2813
	vertical	244	510	236	509
Average brilliance(ph/s/0.1%/mm <sup>2</sup> /mr <sup>2</sup> )		$6.0 \times 10^{23}$	$7.6 \times 10^{22}$	$2.2 \times 10^{21}$	$5.0 \times 10^{20}$
% beam coherence		19	15	0.14	0.13

これからわかるように、PF-ERL では水平方向のエミッタンスが大幅に改善されるため、コヒーレント成分の割合が SPring-8 よりも約二桁高くなる。これは他のエネルギー (E = 4 ~ 40 keV) についても同様である (図 2.11)。

1 対 1 の集光をした場合に得られる単位面積当たりの Coherent flux と Total Flux を図 2.12 に示す (E = 8 keV)。PF-ERL では単位面積当たりの Coherent flux は  $10^{17} \sim 10^{18}$  (ph/s/mm<sup>2</sup>/0.01%bw) となり、SPring-8 の  $10^{13} \sim 10^{15}$  (ph/s/mm<sup>2</sup>/0.01%bw) よりも三桁 ~ 四桁高くなる。

このように、ERL は第三世代の放射光よりも優れたコヒーレント特性を有している。したがって ERL が実現されれば、X線の位相やコヒーレンスを利用する研究が大いに進むと期待される。ここでは ERL の利用研究として、X線光子相関分光法、X線コヒーレント光学、X線位相型顕微鏡、オーバーサンプリング法による物質の構造解析について紹介する。

平野馨一 (KEK・PF)

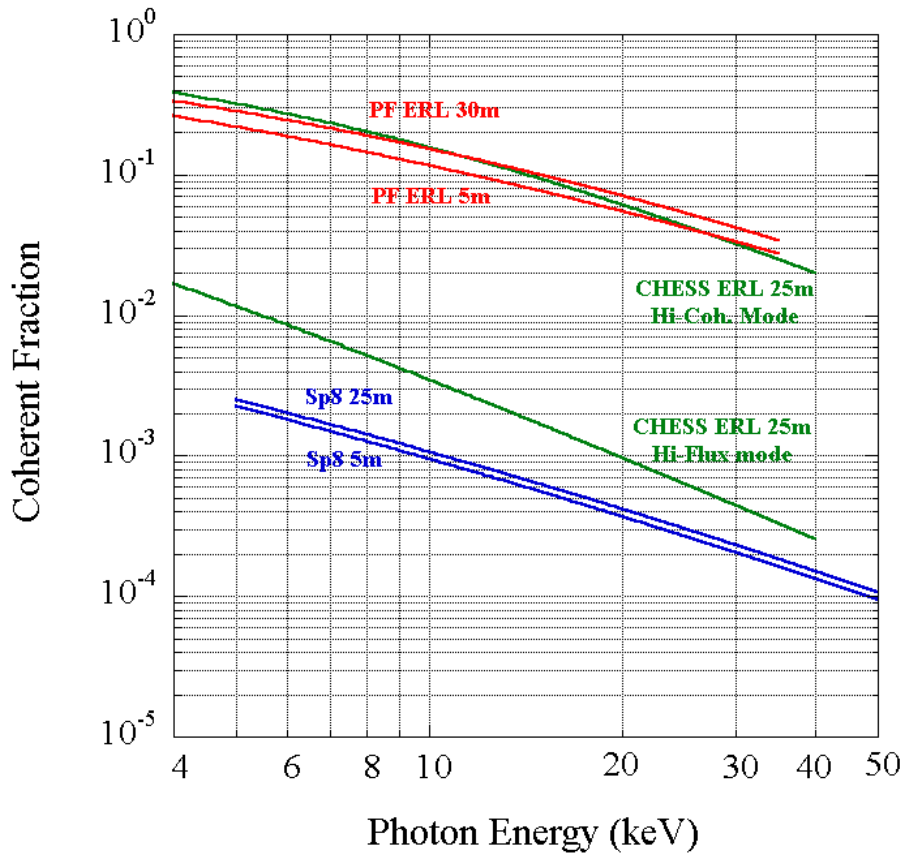


図 2.11: PF-ERL、CHESSE-ERL、SPring-8 で得られるコヒーレント成分の割合。

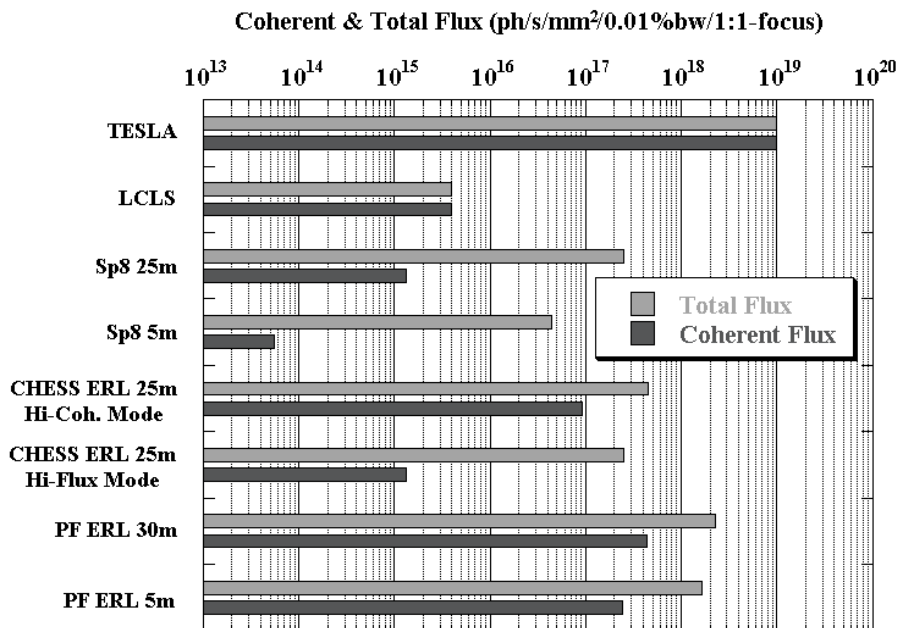


図 2.12: 1:1 の集光をした場合に得られる Coherent flux と Total flux (E = 8 keV)。

### 2.2.2 X線光子相関分光法

X線光子相関分光法はX線の動的散乱に基礎を置いている。物質に動的なゆらぎがある場合には、コヒーレントなX線で照射されると、物質の各部から散乱されたX線の干渉によって散乱強度にゆらぎが現れる。この現象はX線スペckルと呼ばれている。X線スペckルの時間に関する自己相関関数には物質のゆらぎの特性時間を反映した構造が現れる。強度相関分光法では散乱強度の時間自己相関関数

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I(t+\tau)I(t) \rangle_t}{\langle I(t)I(t) \rangle_t} \quad (2.1)$$

を観察する。この時間相関関数は散乱電場の時間相関関数と

$$g^{(2)}(\tau) = 1 + |g^{(1)}(\tau)|^2 \quad (2.2)$$

の関係で結ばれ、散乱電場の時間相関関数は動的構造因子  $S(Q, \tau)$  と

$$S(Q, \tau) = S(Q, 0) \times g^{(1)}(Q, \tau) \quad (2.3)$$

の関係にある。よく知られているように、コヒーレント時間  $\tau_c$  で衝突している気体による散乱では

$$g^{(2)}(\tau) = 1 + |c \exp(-\tau/\tau_c)|^2 \quad (2.4)$$

となる。ここで、緩和時間  $\tau_c$  は散乱線のスペckル幅  $\gamma$  と  $\gamma=1/\tau_c$  の関係がある。一般には、 $g^{(2)}(\tau)$  は  $\tau$  が増大するとともに減少し、この現象の様子が物質のゆらぎの特性時間を反映する。このような測定法によって物質の特性時間とそれに関連した物理量を求める手法は、液体コロイドの拡散現象、高分子の動力学、誘電体や磁性体の相転移、合金の相転移、結晶の二次構造の運動などの研究に適用されている。

合金では、例えば、Brauersら [1] による  $\text{Fe}_3\text{Al}$  のオーダーディスオーダー転移に適用した研究がある。彼らは、 $T \geq T_c$  の近傍で分域構造のゆらぎの時間相関関数を求め、 $T_c$  以下の安定構造との違いを見出した。散乱強度は、 $T_c$  を超えると突然ゆらぎ始め、 $T_c$  以下の時間相関関数が安定な長距離秩序を反映し、遅延時間に対しほとんど変化しないのに対し、 $T_c$  以上では臨界領域における短距離秩序のゆらぎを反映して、遅延時間に対する急激な相関の低下を示している。しかしながら、 $\tau=0$  近傍における相関関数の値については定量的に理論とのくい違いがみられ、これは、スペckル信号強度が不十分ため、多数のスペckルについて加え合わせた結果、ゆらぎのコントラストの低下が生じたためであると結論付けている。これは、コヒーレント強度の増大によって解決されるべき問題である。

また、Lurioら [2] は、グリセロール中に異なる体積比で分散したポリスチレン球のスペckルをいくつかの  $Q$  の値について観察し、30 ms から 300 s の時間相関関数を求めた。このデータから  $Q$  の関数として拡散係数を求め、静的な構造因子の  $Q$  依存性と比較して、構造因子のピークに対応する位置で拡散係数が極小になることを見出した。さらに、構造流体力学的相互作用を取り入れた計算と比較して、グリセロール中のポリスチレン球は硬い球のように振舞うことを示した [2]。遅延時間の小さい所の相関関数に関するスペckル信号の S/N 比は、一つのスペckルの計数率に依存するので、光源の輝度と比例して向上する。

磁性体のスペckルの観察は、最近、Yakhonら [3] によって行われた。彼らは、UAs の  $M_4$  吸収

端の共鳴磁気散乱を利用して反強磁性 001 反射の位置を中心とする磁気スペックルの観察を行った。磁気散乱強度が弱いためフレーム当たり最大 10 s の測定を 181 フレームで合算して、スペックルパターンを構成している。この場合にコントラストの高いスペックルの時間相関関数を求めるためにはおよそ二桁程度のコヒーレント強度の増大が必要である。

誘電体についても、スペックルの観察は、つい最近、Tai ら [4] によって行われた。彼らは、プラズマ X レーザーを用いて、BaTiO<sub>3</sub> の瞬間スペックルを観察した。図 2.13 に BaTiO<sub>3</sub> の *a/c* ドメインの分域構造によるスペックルの温度依存性を示してある ( $T_c=122$  )。これは X 線レーザーの短パルス性 ( $\sim 7$  ps) を利用して分域の動的な動きを瞬間的に止めて見たことに相当するスペックルである。このような系の相転移に関する時間相関分光法は ERL の興味ある適用対象である。しかしながら、この場合にも、コヒーレント強度の増大が本質的な役割を果たすことになる。

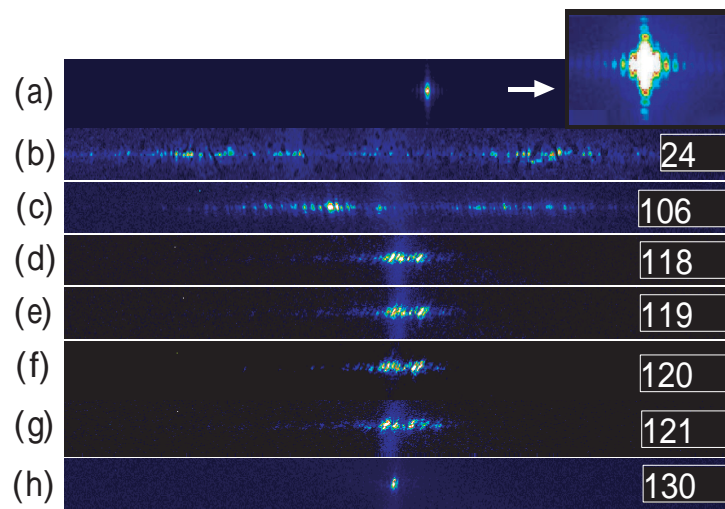


図 2.13: Speckle patterns measured by a single exposure of 7 ps with the TCE soft X-ray laser. (a) The direct probing beam pattern; (b) diffraction patterns via the *a/c* domain region at room temperature 24°C; (c), (d), (e), (f), (g), and (h) correspond to the diffraction pattern from the same region on the sample at temperature 106°C, 118°C, 119°C, 120°C, 121°C, and 130°C, respectively. The Curie temperature of the sample is 122°C. The scattering took place along the horizontal direction *q*, since the domain walls were set vertically. All these pictures are shown in a same scale for comparison.

第三世代光源と ERL を比較すると、ERL では輝度が二桁、コヒーレントフラックスが一桁大きく、空間コヒーレンス及び時間コヒーレンスが格段に向上する。強度相関分光法の精度は格段に向上することが期待できる。さらに、繰り返し周波数が 1 ns 程度になるのでこれまでよりも早い 0.1  $\mu$ s 程度の揺らぎを調べることが可能になる。

結論として、ERL の実現は、強度相関分光法に関してその適用領域と対象を大幅に広げることができ、未知の新しい科学の展開が期待できる。

並河一道 (東京学芸大)

## 参考文献

- [1] S. Brauer, G. B. Stephanson, M. Sutton, R. Bruning, E. Dutresne, S. G. J. Mochrie, G. Grubel, J. Als-Nielsen, and D. L. Abernathy, Phys. Rev. Lett. 74 (1995) 2010.
- [2] L. B. Lurio, D. Lumma, A. R. Sandy, M. A. Borthwick, P. Falus, S. G. J. Mochrie, J. F. Pelletier, M. Sutton, L. Regan, A. Malik, and G. B. Stephenson, Phys. Rev. Lett. 84 (2000) 785.
- [3] F. Yakhon, A. Letoublon, F. Livet, M. De Boissieu, F. Bley and C. Vetter, ESRF Newsletter 32 (1999) 12.
- [4] R. Z. Tai, K. Namikawa, M. Kishimoto, M. Tanaka, K. Sukegawa, N. Hasegawa, T. Kawachi, M. Kado, P. Lu, K. Nagashima, H. Daido, H. Maruyama, A. Sawada, M. Ando and Y. Kato, Phys. Rev. Lett. 89 (2002) 257602 .

### 2.2.3 X線コヒーレント光学

#### 2.2.3.1 総論

ERL光源は、蓄積リング型第三世代放射光と同様にカオティックな光源であるが、短パルス、小光源サイズとなることから、現在の放射光利用と類似の形態でコヒーレント利用計測や、高時間分解計測をさらに発展させる場となることが期待される [1]。SASE-FEL光源が、光源としてのコヒーレンスを持つために、現在の放射光利用とは異なる利用形態をとることが予想されるのに対して、ERLでは多くのユーザーがいわば解析接続的に移行することが可能であり、計画通りの性能が出れば広範な学術分野で利用されていくものと思われる。

第三世代放射光源の利用により、X線領域でのコヒーレンスの利用が本格的に開始された。第三世代での小さなエミッタンスと比較的大きな周長は、結果として試料位置から遠くの小さな光源を見ることになり、空間コヒーレンスの増大をもたらすこととなった。ここで注意しなければならないのは、第三世代光源からのX線のコヒーレンスは、レーザー光源がそうであるような光源自体がコヒーレントな機構をもつためにコヒーレント光が発生するというよりはむしろ、小さな光源を遠くで見ることによる伝播に起因するコヒーレンスだということである [2]。試料が光源から遠くに離れると、試料内の小さな体積中ではX線の振幅と位相は良く定義された量となる。このために、その体積内の構造に起因する干渉が観察できるようになる。したがって、全くのインコヒーレント光源であるX線管を用いても、数百オングストロームのコヒーレンス体積内での構造を反映した Bragg 反射が観察できるのであり、また 19 世紀の初頭に Young が有名なダブルスリットの実験をなしえたのも、この伝播に起因するコヒーレンスを利用したからに他ならない [3]。大多数の干渉実験には光源コヒーレンスは必須でなく、伝播コヒーレンスが重要である。現に既存の放射光施設で行われていることから明らかなように、X線ホログラフィにとってさえ光源コヒーレンスは必須なものではない。ERL光源も、従来の蓄積リング光源と同様に、光源がコヒーレントな発生機構を持つものではないが、光源サイズをさらに小さくすることにより伝播によるコヒーレンスを大幅に向上させるものである。

このような高コヒーレントX線の利用に当たってのX線光学の役割には、二面性がある。第一は、光のもつコヒーレンスを崩さずに試料まで運び、いわばビームライン技術の一環としてのコヒーレントX線光学であり、第二はコヒーレントX線で何を見るかという利用技術に直結したX線光学である。後者は前者の基盤の上に成り立つものであるので、ビームライン技術としてのX線光学はおろそかにできない。しかしながら、この点は第三世代放射光でのビームライン技術との共

通点が多く、しかも ERL で予想される光学素子への時間平均熱負荷は第三世代放射光の場合とほとんど変わらないため、第三世代放射光で開発された技術がそのまま利用できよう。第三世代放射光でも、空間的コヒーレンスの向上によって、従来コヒーレンスを保存すると信じられてきたシリコン単結晶回折光学素子においても、表面形状によるスペックル生成が問題になっている [4]。この問題は表面形状のみでほぼ性能が決まる全反射光学素子ではより深刻であり [5]、今後の真剣な R&D が必須であろう。例えば、ビーム集光を考えると、光源ビームサイズを  $10 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$  と仮定し、集光系として 100:1 の縮小光学系を用いれば原理的には  $100 \text{ nm} \times 100 \text{ nm}$  のフォーカスサイズが達成可能であるが、現在普通に用いられている全反射ミラーの表面スロープエラーは  $1 \mu\text{rad}$  程度であるので、すぐに  $1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$  程度まで広がってしまう。回折光学素子でも表面形状からのスペックルを抑制するためには、 $0.1 \mu\text{rad}$  以下のスロープエラーが必要となり、さらにこの場合には表面加工により歪が導入されないことが必要となる。スペックルの原因は狭い意味での光学素子のみでなく、真空遮断窓やスリットエッジの表面形状なども問題となる。これらは、第三世代放射光や特別な光学系によって空間コヒーレンスを向上させた第二世代放射光で試験開発研究が可能なので、ERL に行く以前に十分な R&D が行われることを期待する。

次に X 線コヒーレンスを利用の観点から考えてみよう。伝播によるコヒーレンスの向上のひとつの尺度は、光源の空間的サイズ  $a$ 、X 線の波長  $\lambda$ 、光源と観測点の間の距離  $L$  により

$$d \propto \frac{\lambda L}{a} \quad (2.5)$$

で与えられる（空間的）コヒーレンス長  $d$  である。ERL での高いコヒーレンスは光源サイズ  $a$  が小さいことに起因する。特に、水平方向のビームサイズが小さいことに特徴があり、現状の第三世代光源の 1/100 以下になることが期待されている。ERL において、 $L$  が現状の第三世代光源と同程度にとれると仮定すれば、第三世代光源との違いは  $a$  によるものとなる。水平方向の小さなビームサイズは第三世代放射光では垂直方向のみで可能な回折限界集光を水平・垂直の両方向で可能とするので、高効率の X 線集光が可能となろう。また第三世代光源でのコヒーレントイメージング等で問題になっている水平方向と垂直方向でのコヒーレンスの違いによる分解能の違いを解消することになる。

光源サイズが小さくなり、空間的コヒーレンスが向上したことが第三世代光源との明瞭な差異を示すのは、短波長（高エネルギー）領域のように思われる。2.5 式で、 $a$  が小さくなった分  $\lambda$  を小さくしても、第三世代の低エネルギー X 線で得られている程度の  $d$  は得られる。既に、第三世代光源利用においても、低エネルギーで試料との相互作用の大きな X 線の利用は、試料の放射線損傷や熱的損傷の面から望ましくないことが明らかになりつつある。試料の情報を試料と X 線ビームとのエネルギーの授受なしに取得することが重要である。コヒーレント X 線利用の最大の眼目は情報を位相変化に乗せて得ることであり、試料にエネルギーを移行しないことであると個人的には考えている。SASE-FEL ではピークパワーの大きさから、個々の光子と試料との相互作用が小さくても、トータルとしてのエネルギー移行量は大きくなり、単一パルス入射により試料が破壊されることを前提とした計測系を構成する必要がありそうだが、ERL の場合にはその心配はない。したがって、なるべく相互作用の小さい高エネルギー X 線を用いることにより、試料に移行するエネルギー量を減らした状態で、位相情報から試料の状態を知る方法の開発が重要だと思われる。

ERL では、フェムト秒領域に入る X 線パルス幅が期待できるので、時間的コヒーレンスの観点からもいくつかの面白い問題がある。第三世代放射光ではパルス幅は数十ピコ秒程度であり、10 keV 領域の X 線でパルス幅と時間的コヒーレンス長を同程度にするには、 $10^{-9}$  程度のエネルギー分解能 ( $\Delta E/E$ ) が必要となる [5]。これより、2 桁パルス幅の短い ERL では同じエネルギー領域で  $10^{-7}$  程度のエネルギー分解能でパルス幅とコヒーレンス長が同程度になる。すなわち、meV 分解

能の分光器を用いればよい訳で、高分解能分光器の構成がずっと簡単なものになる。このような分光器を通した X 線を、水平・垂直とも空間的コヒーレンス長よりも狭いスリットで切り取れば、ある意味でシングルモードの X 線ビームとなり、様々な新しい応用が生じよう。この場合に単一パルス内に入る光子数は多いとはいえないが、X 線領域での多光子過程の基礎的な研究を行うのには十分であろう。

パルス幅が十分に小さく、10 フェムト秒に届くようになれば、過去 10 年間にフェムト秒レーザーが基礎化学に果たした役割と同様な役割を、構造化学的な側面に関して担うものと思われる [6]。長波長のレーザーでは化学反応の初期過程の電子過程を観察することが主たる役割であるのに対して、フェムト秒 X 線パルスでは、これと相補的な化学反応初期過程での構造変化を追跡することが可能である。この方向の研究では、X 線より物質との相互作用の大きな短パルス電子線の可能性もあるが、スペースチャージによる電荷量の制限等を考慮すると、X 線の入り込む余地は十二分にある。但し、短パルス X 線では回折光学素子を用いた場合に時間遅れが生じ、結晶光学素子の場合 X 線が、消衰距離を走る分だけのパルス幅の広がりが生ずる [7]。これは、数フェムト秒に対応するので、それ以下の時間幅を考える場合には注意が必要である。

石川哲也 (理研・播磨)

## 参考文献

- [1] Proceedings of XRay Science Workshop on an Energy Recovery Linac source of synchrotron radiation (2002); <http://erl.chess.cornell.edu/papers/X-RayScienceWorkshopDec2000.htm>.
- [2] M. Born and E. Wolf: '*Principles of Optics*', Chapter 10, 7<sup>th</sup> Edition, Cambridge University Press, Cambridge (1999).
- [3] T. Young: Phil. Trans. 91 (1801) 23.
- [4] M. Yabashi: private communication.
- [5] M. Yabashi, K. Tamasaku and T. Ishikawa: Phys. Rev. Lett. 87 (2001) 140801.
- [6] 例えば、E. W.-G. Diau, J. L. Herek, Z. H. Kim and A. H. Zewail: Science 279 (1998) 847.
- [7] H. Yamazaki and T. Ishikawa: J. Appl. Crystallogr. 35 (2002) 314.

### 2.2.3.2 軟 X 線フーリエ分光

シンクロトロン放射光の軟 X 線領域を分光して利用するとき、一般的に回折格子を用いたモノクロメータが使われる。出来るだけ高いエネルギー分解能が必要な研究では、モノクロメータの性能は研究の質を大きく左右する。現在の軟 X 線モノクロメータでは、 $10^{-4}$  程度がエネルギー分解能  $\Delta E/E$  の限界となっており、いわばその先は未開拓領域と言える。

赤外光の領域ではフーリエ分光といった非分散型の方式が発達している。これはビームのバンド幅を広いままに 2 本に分割し、一方の光路長を可変にして再び重ねあわせ、両者の干渉を測定するものである。光路差を変えながら干渉の強度を測定したデータはインターフェログラムと呼ばれ、これをフーリエ変換することにより、入射ビームのスペクトル形状が得られるのである。インターフェログラムに現れる強度振動の数が多ければ、すなわち長く光路差をスキャンできれば、

細かいスペクトルまで見ることができる。軟X線領域でもフーリエ分光が実現できないであろうか？そして、回折格子モノクロメータの限界を打破できないであろうか？

そのためには光路長可変の二光束干渉計の構築が必要である。硬X線領域では結晶で作る所謂Bonse-Hart型X線干渉計が使われており、フーリエ分光のデモンストレーション実験も存在しないわけではない。しかし、結晶を使ったX線光学系ではかなり高いエネルギー分解能まで実現でき、硬X線領域でフーリエ分光を行う意義はすぐには見えてこない。一方、軟X線領域では上で述べた事情があり、軟X線フーリエ分光には大いに期待を寄せたい。しかし、肝心の軟X線干渉計が未だ実現されておらず、まずこれをクリアせねばならない。

軟X線をコヒーレントに分割・結合するには、まずビームスプリッターが必要となる。幸い、近年の製膜技術の進歩により、基板のない薄膜や多層膜が入手できるようになっており、フーリエ分光に好ましい振幅分割によるビームスプリッターとして使用できる。現在我々が進めている予備的研究では、NTT-ATによって試作された、60 nmのSiNを支持膜に2.5 nmのRu半透層を形成したものを試用している。13 nm用に試作されているが、入射角との組み合わせで12 nmから20 nmの範囲で使用可能である。

あとは、各光学素子を配置・保持して、軟X線の波長以下の安定性で光路長を保つ必要がある。我々は、硬X線領域で、従来からある一体成形のBonse-Hart型X線干渉計ではなく、分離された結晶ブロックを配置・調整するステージを用いるX線干渉計を既に開発した経験を有している。軟X線領域においては、より波長が長い電磁波を扱うわけであるから、干渉計構築は十分に実現性があることと考えている。フーリエ分光の場合、波長の一万倍以上の光路差を生成できるステージの開発がさらに必要となる。

干渉を観察できるためには、(1)空間的可干渉距離に比べて干渉光学系の誤差が小さいこと、(2)計測時間中における光学系のドリフトが無いこと、さもなければ追従できること、そして(3)振動による光路長の変動が軟X線波長より十分に小さいこと、が要求される。

言うまでも無く、将来光源を用いれば空間的可干渉距離が増し、(1)に関連して、干渉光学系が構築し易くなる。すなわち、光学素子を配置する際の角度や位置に要求される精度が大きく緩和される。また、構成できる干渉光学系の種類も増す。

計測時間が長くなると、(2)のドリフトが問題となが、高輝度光源を使う場合はそれ程問題にはならないであろう。フーリエ分光の場合は、幅広いスペクトルの光を同時に検出するので、従来のように分光することによってフラックスが減るという問題が無いという特徴も有利に働く。

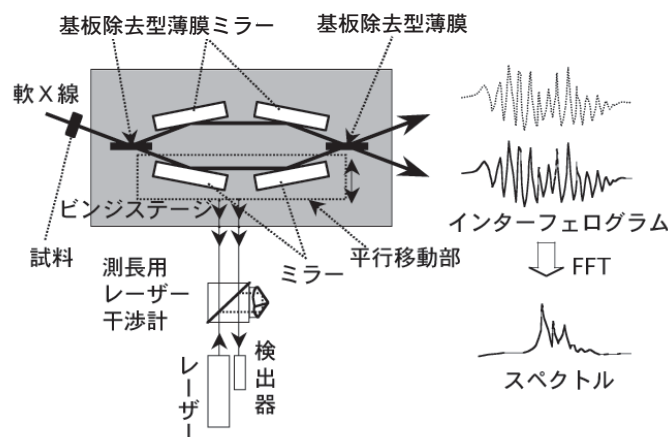


図 2.14: 軟X線フーリエ分光法の構成例



ただし、(3)の振動の影響は深刻であるといえる。光学系が可干渉距離以内の誤差で調整されていて光路が振動してしまえば、振動の方向によっては干渉縞も振動することになり、結果として平均化されて干渉が観察されなくなるからである。高輝度光源を使えば、通常の振動に比べて十分短い時間で計測が可能となるので、一般的に言って干渉の観察は容易になる。したがって、この点からも様々な干渉光学系が構築可能となるであろう。フーリエ分光の場合は機械的な光路長のスキャンが必要となるので、残念ながら振動より高速な計測は難しい。振動をできるだけ除去する手段が望まれるのは当然だが、スキャンの各ステップでは外部振動に比べて一瞬といえる時間で計測できるはずであるので、このデータをスキャンした光路長に対してうまくスケールリングする方法の開発も必要である。

図 2.14 に軟 X 線干渉計の構成例を示した。軟 X 線ハーフミラーで分けられたビームはそれぞれ 2 枚組みのミラーで反射され、再び第 2 の軟 X 線ハーフミラーで重ねあわされる。両者の光路差はミラーを矢印の方向に平行移動することで変えられる。このとき、光路差が変わる以外に、干渉光学系としての変化はない。ミラーの移動量はレーザー干渉計でモニタし、検出器で強度変動を計測してインターフェログラムを得る。インターフェログラムをフーリエ変換して得られるスペクトルは、干渉計に入射する軟 X 線のスペクトルに干渉計の装置関数をかけたものとなる。光学素子の材質に起因する吸収端から離れている限り装置関数はなだらかであるので、干渉計に入射する軟 X 線のスペクトルを知ることができると言ってよい。すなわち、試料と相互作用した後の軟 X 線をこの干渉計で分光するという使い方となる。

本研究が成功すれば、多くの軟 X 線分光研究に影響するであろうことは、容易に想像できる。現在の研究の高度化のみならず、新しい段階の分光研究開拓の契機になるかもしれない。軟 X 線干渉計の開発という課題が最初にあるが、本光源計画の実現により、そのような干渉計がオペレーションしやすくなり、その利用研究も促進されるものと期待される。

百生敦(東大・工)

### 2.2.3.3 X 線回折に伴う位相シフトの応用 超高速 X 線シャッター

X 線の位相は X 線回折学において重要な役割を果たしている。たとえば、X 線がシリコンのような完全に近い結晶に入射してブラッグ・ケースで回折する時、回折 X 線の位相は選択反射領域内で 180 度変化する。この事実は X 線定在波法の理論的基礎をなしているだけでなく、X 線トポグラフィで欠陥像などの解釈を行う際の基本でもある。また透過 X 線(前方回折 X 線)について見ると、その位相は回折条件の付近で急激に変化する [1]- [3]。この事実は X 線透過型移相子の理論的基礎をなしている [4]- [6]。このように、回折に伴って生じる X 線の位相変化は X 線回折学の随所で大きな役割を果たしており、ERL や XFEL のようなコヒーレント光源が実現されれば、その用途が大いに広がると期待される。

ここでは透過 X 線の位相シフトの応用例として、フェムト秒オーダーの開閉スピードを持つ超高速 X 線シャッターの可能性について紹介する [7]。図 2.15 は X 線干渉計を用いた X 線シャッターの構成例である。干渉計に入射した X 線は、干渉計内で二本のコヒーレントなビームに分かれる。一方の光路には結晶を挿入し、その角度を回折条件の近くに合わせる。他方の光路には位相板を挿入し、出射ビーム(O 波)の強度がゼロになるように角度を調整する。ここでレーザーを結晶に照射すると、結晶内の電子分布が変化して分散面の形状が変わり [8]、透過 X 線の位相がシフトして O 波が生じることになる。こうして、干渉計はレーザー光をゲート信号とするシャッターとして機能することになるので、数フェムト秒のレーザーパルスを用いれば、数フェムト秒の X 線パルスが得られることになる。レーザー光をゲート光とポンプ光に分岐させれば、数フェムト秒の精度でポンプ・プローブ実験を行うことも可能になる。

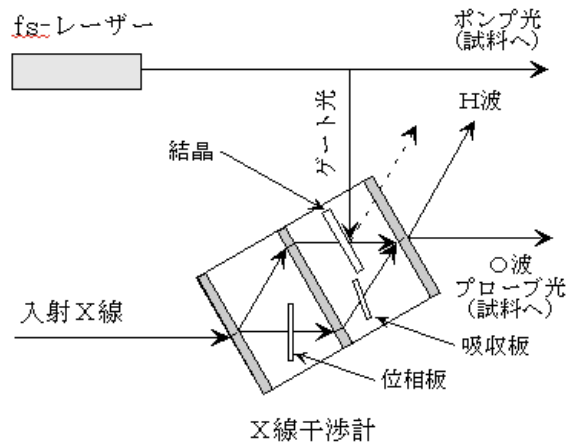


図 2.15: X線干渉計を用いた超高速X線シャッターの例。ここではLLL型干渉計を用いる場合について示しているが、BBB型のような他の型の干渉計を用いることもできる。

このような超高速のX線シャッターを実現するには、レーザーパルスの照射で有意な位相シフトを生じさせる必要がある。そこで、結晶構造因子の大きさ  $|F|$  と位相シフト  $\delta$  の関係について計算を行った。図 2.16 はラウエケースのシリコン 111 反射の場合についての計算例である ( $\lambda = 0.15 \text{ nm}$ ,  $t = 50 \text{ }\mu\text{m}$ )。オフセット角が  $0.25''$  の点に注目すると、 $|F|$  が 4% 減少した時の  $\delta$  の変化は約 90 度である。これはシャッター機能を実現するのに十分な位相シフト量である。この計算結果から、結晶構造因子を数十ミクロンの厚さにわたって数%変化させることができれば、シャッター機能を実現できることがわかる。今後の課題は、このような条件を満たす最適なレーザーと結晶の組み合わせを見つけることである。

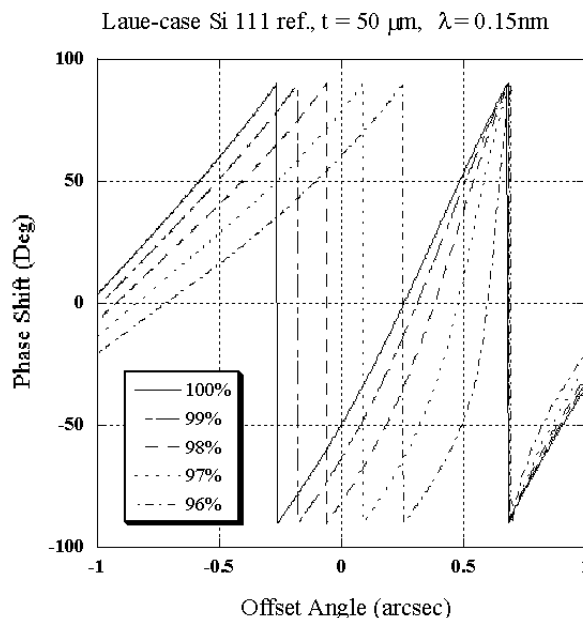


図 2.16: 結晶構造因子の大きさ  $|F|$  と位相シフト  $\delta$  の関係の計算例。

## 参考文献

- [1] K. Hirano and A. Momose : Phys. Rev. Lett., 76 (1996) 3735.
- [2] K. Hirano and A. Momose : J. Synchrotron Rad., 5 (1998) 967.
- [3] 平野馨一、沖津康平、百生敦、雨宮慶幸 : X線分析の進歩 33 (2002) 25.
- [4] K. Hirano, K. Izumi, T. Ishikawa, S. Annaka and S. Kikuta : Jpn. J. Appl. Phys., 30 (1991) L407.
- [5] K. Hirano, T. Ishikawa and S. Kikuta : Rev. Sci. Instrum., 66 (1995) 1604.
- [6] 平野馨一 : 日本放射光学会誌 11 (1998) 238.
- [7] 平野馨一 : 2002 年秋の物理学会 講演予稿集.
- [8] B. W. Adams : Rev. Sci. Instrum., 73 (2002) 1632.

## 2.2.4 F Z Pあるいはミラーを用いたマイクロビームとX線顕微鏡について

## X線顕微鏡の現状

この10年でX線顕微鏡の光学技術は劇的に進歩してきている。例えば硬X線 ( $1\text{\AA}$  前後) のマイクロビームでは  $100\text{ nm}$  程度の回折限界の集光ビームサイズが既の実現されている [1-3]。図 2.17 にその一例を示す。楽観的な予想では10年後にはX線光学系の理論限界に近い  $10\text{ nm}$  の分解能が達成される可能性がある。このような高分解能の実験を行うには実際には第三世代の高輝度光源が必要であった。光学素子としては電子線描画で作成したフレネルゾーンプレート、積層型ゾーンプレート、全反射ミラー等が使われているがこれらの光学素子技術の基礎は第三世代放射光の稼働前に開発されていたものである。しかしながら、光学素子の性能限界を評価することが出来なかつた為に、光学素子の製作プロセスへのフィードバックも出来ていなかったのである。

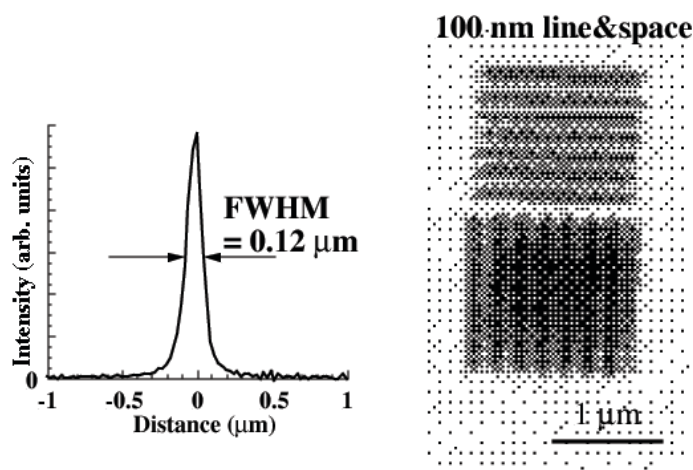


図 2.17: FZP を用いたマイクロビームと走査型顕微鏡画像の例 (X線エネルギー 8 keV)

しかしながら、現状の第三世代光源は硬X線領域の干渉実験を行うに適した光源では無い。例えば SPring-8 の  $6\text{ nmrad}$ 、カップリング 1% の条件は波長  $1\text{ \AA}$  のX線に対して回折限界よりはるかに大きい。光の固有エミッタンスを  $\lambda/4\pi$  で定義すると (ただしこれはかなり厳しい条件である) ,

実際に利用可能なコヒーレントフラックスは全フラックスの0.02%程度になる。SPring-8のアンジュレータビームラインでは結晶分光器で単色化した後の全積分強度は $10^{14}$  photons/s程度であるが、コヒーレントなフラックスは $10^{11}$  photons/s以下である。また、現実には分光結晶の振動や歪み、X線取り出し窓の不均一性などにより波面が乱されるために、現実利用可能なコヒーレントフラックスはもっと少ない。さらにコヒーレント成分を切り出すための空間フィルターのマッチングを取ることが困難であるため（理想的なピンホールの位置は光源そのものである）、実際に使えるコヒーレントフラックスは $10^{10}$  photons/s程度にすぎない。このことは放射の99.99%は不要な熱負荷を与えていることを示している。この熱負荷は現実には例えば結晶の歪みの原因となっていると考えられる。

アンジュレータ放射は無限小エミッタンスのビームに対して周期数で決まる単色光になり、周期数 $N$ に対して光のバンド幅は $\Delta E/E = 1/N$ である。しかしながら、有限のエミッタンスのために第三世代放射光源でも実際にはもっと悪くなっている。また、蓄積リングではエネルギー分散が0.1%程度あるために長い直線部で1000周期程度の長直線アンジュレータを使っても放射のバンド幅に限界がある。利用実験の内容にも依るが、結晶分光器で得られるバンド幅は必要以上に狭い場合が多い。通常のSi(111)結晶では $\Delta E/E \sim 10^{-4}$ であるが、高精度の吸収スペクトル測定や精密回折実験を除けば、 $10^{-3}$ 程度のバンド幅でも実験可能である。また、ゾンプレートを光学素子とする顕微鏡では必要なエネルギー分解能はゾンプレートの最外ゾーンのフレネル数で決まり、普通100~1000程度である。微小結晶の構造解析においては、ラウエ関数の広がりを見るとサブミクロンの結晶ではラウエ関数による結晶固有の角度幅が低次反射の場合では完全な結晶でも1 mrad程度になることを考えると、結晶構造解析も不可能ではないだろう。

以上の観点から考えると、ERLはFELと比較した場合でも時間構造によるピーク輝度以外の全ての項目で同程度の性能を持っていると言えよう。実験によってはパルス動作のFELよりむしろCW動作するERLのほうが都合な場合が多いであろう。ここではERLによって可能となり得る位相計測を含めた顕微鏡について考える。

### ERLによって可能になる研究課題と成果

ERLで10 pmradレベルの低エミッタンスと $10^{-4}$ 以下の電子エネルギーの広がりが実現された場合、ホログラフィーのような位相計測イメージングにおいて画期的な進展が期待出来る。必ずしも切り離して考えることは出来ないが、低エミッタンスによる空間的なコヒーレンスが重要になる場合とアンジュレータ放射のバンド幅（分光器無しで実現される時間コヒーレンス）が重要になる場合がある。

#### 1. 空間コヒーレンスの利用

マイクロビーム：フレネルゾンプレートや全反射ミラーのような集光結像光学素子でマイクロビームを生成するときは、光源の縮小結像を行っている。このときの幾何光学的な集光スポットサイズ $d$ は（十分に縮小率が小さいとすると）、焦点距離 $f$ と光源からレンズまでの距離 $L$ と光源の幾何学的サイズ $S$ によって、幾何光学的な縮小率 $f/L$ で、

$$d = S * f/L \quad (2.6)$$

で定義される。一方この集光光学素子の回折限界の集光スポットサイズ $\delta$ は、光学素子の数値開

と書かれる（いわゆるレイリー条件）。回折限界の集光スポットサイズを実現する条件は幾何学的なスポットサイズが回折限界より小さいこと、すなわち  $\delta < d$  である。この条件は、

$$0.61\lambda f/A > S * f/L \quad (2.8)$$

であり、

$$0.61\lambda L/S > A \quad (2.9)$$

と書き換えられる。  $0.61\lambda L/S$  は Zerike の定理による可干渉領域の大きさであり、いわゆる“回折限界の分解能には光学素子をコヒーレントに照明しなければならない”という条件を表している。回折限界の X 線を放射する ERL のような光源では、全フラックスを回折限界のスポットサイズに集光可能となる。もし、蛍光 X 線分析のように  $10^{-2} \sim 10^{-3}$  程度のバンド幅で十分な実験であれば、分光器を使わずに光源をそのまま利用できる。たとえばビーム電流が 1 mA であっても SPring-8 標準的アンジュレータビームラインの 1000 倍以上のフラックス密度が実現できる。ただし、これは現状では例えば集光ビームサイズが 100 nm 以下のマイクロビームに限った場合であり、数ミクロン程度の分解能を要求する実験の場合はほとんど利点が無いことに注意する必要がある。また、必要以上に高いコヒーレンスで照明してもフラックスの損失になるだけであり意味がない。

このマイクロビームの応用としては走査型顕微鏡や微小領域の蛍光 X 線分析が主な応用であろうが、長直線多周期アンジュレータを用いて  $10^{-3}$  程度のバンド幅が実現出来れば、先に述べたように結晶分光器を用いずに直接アンジュレータ放射を用いた場合でも、微小結晶の構造解析や分光実験が可能になり得る。

Gabor 型ホログラフィー [4]：ホログラフィーにはコヒーレントな照明が必要と言われているが、近接型（いわゆる in-line holography）では必ずしも完全コヒーレントな照明が必要な訳ではない。視野内の局所的な領域でのコヒーレンスがあれば可能である。完全なコヒーレンスが要求されるのは図 2.18 に示すような集束ビームの集光点からの球面波で拡大投影する形式のホログラフィー（これが本来の Gabor 型ホログラフィー）の場合である。この場合空間分解能は集光ビームサイズで決定され、検出器の空間分解能に依存しない。また、共役像の影響も小さくなる。しかしながら完全に共役像を消すにはフーリエ変換ホログラフィーのような参照光を別に持つ二光束干渉が必要である。また、Gabor 型ホログラフィーにおける試料の制限、すなわち視野内の一部のみが試料であること、は依然として変わらない。

フーリエ変換ホログラフィー：フーリエ変換ホログラフィーは一種の二光束ホログラフィーであるが、参照波を被写体近くの点光源にする方法である。これによって、拡大投影型の Gabor ホログラフィーと同じように、検出器の分解能に依存せずに参照波点光源のスポットサイズによって空間分解能が決められる。現在普通に行われているフーリエ変換ホログラフィーは図 2.19 に示すように参照点光源を生成するためにフレネルゾーンプレートを用いている [5]-[6]。物体を照明するのはゾーンプレートを透過した零次回折光である。この場合、鮮明な干渉縞を観測するためには物体からの散乱回折光と参照波の強度が同程度であることが望ましい。そのためにはゾーンプレートの回折効率をむしろ高くないほうが良い場合がほとんどである（マイクロビーム生成の場合とはここが異なるので、同じゾーンプレートを使うのは適切ではない）。参照光と物体光の強度バランスを取るためには参照光にアブソーバーを入れる必要がある場合もある。また、干渉縞の

イメージにはゾンプレートの  $-1$  次回折や高次回折光が部分的に重なるので適切な空間フィルターやビームストップで切る必要がある。したがって通常は干渉縞を全視野で観測できないためデータに部分的な欠落が生じる。

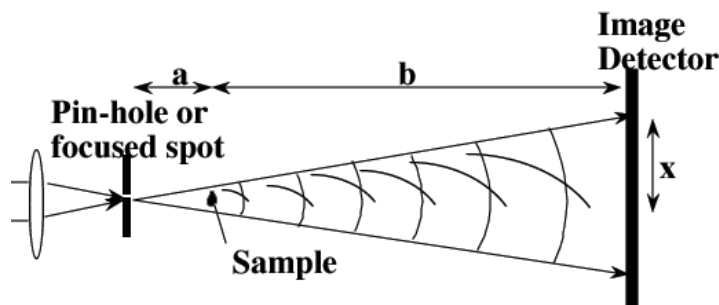


図 2.18: 拡大投影型 Gabor ホログラフィー。

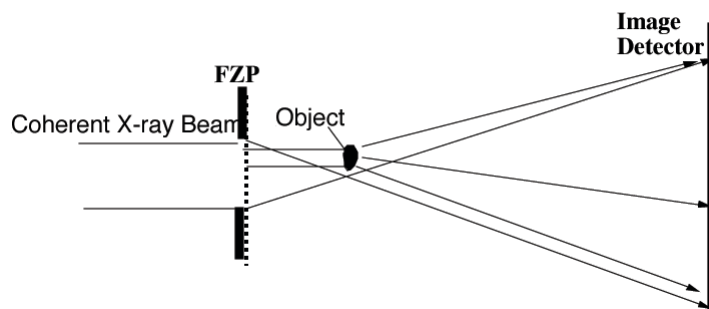


図 2.19: FZP を用いたフーリエ変換ホログラフィー。

二光束干渉計（二光束ホログラフィー）: 共役像の重なりがない完全なホログラフィーとしては、プリズムや半透明鏡でビームを分割して参照波とする Leith-Upatnieks 型のホログラフィー [7] があるが、X線領域ではレーザーのような可干渉光がなかった為実現されていなかった。最近、図 2.20 に示すような屈折プリズムを用いた光学系で、SPring-8 の中尺ビームラインのコヒーレント硬X線ビームを用いて初めて純粋な二光束干渉計が実現された [8]。また、この干渉計はホログラフィーだけでなくシアリング干渉計としての微分位相像の計測にも応用され、可視光領域でのノマスキー微分干渉顕微鏡に対応する画像が得られている [9]。この方法は現状では画像検出器で空間分解能が決められているが、結像光学系と組み合わせることによって高空間分解能の顕微鏡としての発展が可能であろう。これからの可干渉X線を用いた画像計測法のひとつとして発展が期待される。

## 2. 時間コヒーレンス（単色性）の利用

ゾンプレートをを用いた結像顕微鏡の研究も進みつつあり、現在では  $100 \mu\text{m}$  レベルの分解能も得られている。Zernike 顕微鏡のような位相計測法であっても、結像顕微鏡の場合は高コヒーレントな照明は必要なく、逆にスペックルノイズが生じるため不都合な場合が多い。しかしながら、ERL で期待される狭バンド幅のアンジュレータ放射はゾンプレートをを用いた結像顕微鏡に最適である。また、実際の高分解能結像顕微鏡の視野は  $100 \mu\text{m}$  程度であるため、ERL のアンジュレータ放射で得られるビームサイズとのマッチングも良い。これによってマイクロ秒レベルの露光時

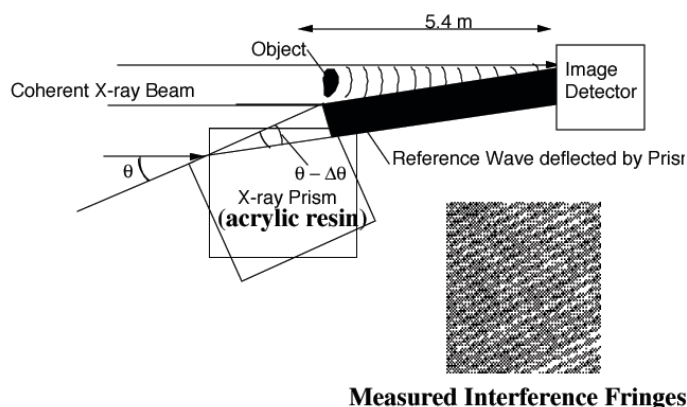


図 2.20: 屈折プリズムを用いた二光束干渉計-X線エネルギー 12.4 keV での実験結果

間で顕微鏡像が得られる可能性がある。

#### 必要な光学技術とビームラインに関する課題

##### 1. コヒーレンスを保存するビーム輸送系

現状では、分光結晶や真空窓がコヒーレントX線の輸送に耐えるだけの精度を持っている保証がない。シリコンの液体窒素冷却分光器でも高エネルギー領域では熱歪みのためにコヒーレンスが乱されていると思われる。全反射ミラーに関しては最近ほとんどスペックルを生成しない高精度研磨が研究室レベルでは実現されているが、これも熱負荷に関しては未知の領域である。分光器無しでアンジュレータ放射をそのまま使う場合でも、電子ビーム軌道に放射される制動輻射ガンマ線をさけるために、なんらかのビーム偏向が必要である。現在の商業ベースの研磨技術ではコヒーレンスを乱さない反射鏡製作は困難である（輝度の保存には大体満足出来るレベルであるが、スペックルの無いミラーは難しい）。偏向角は小さいが屈折プリズムで偏向させることも可能である。現状のプリズムでもスペックルの問題はほとんどない。しかしながら、透過率が高く熱負荷に耐えるプリズムが可能かどうかは未知の問題である。

なお、真空窓に関する問題を解決するもっとも有効な方法は加速器からエンドステーションまでを窓無しで直結することである。これは軟X線では一般的なことであり、技術的な解決が可能であろう。

##### 2. ビームラインと実験ハッチの長さ（Fナンバーのマッチング）

たとえ光源が完全コヒーレントであっても、光を損失しないためには実際の光学素子開口とのマッチングが取れていなければならない。また、広い（mmサイズ）の視野を要求する実験も考えられる。光源サイズと発散角の関係は $\beta$ 関数とアンジュレータの長さで決まってしまうが、 $\beta$ 関数は輝度最大の条件から大体アンジュレータの長さと同程度でなければならないことが分かっている。また、効率が100%近くあってコヒーレンスを保存し、かつ自由に集光/発散を制御出来るような光学素子が困難であることを考えると、Fナンバーのマッチングを取るにはビームラインの長さしか解が無いことになる。ビームラインの全長として1 km程度を確保すると共に、任意の位置に光学素子や実験装置を配置出来るような構成が望ましい。

## 参考文献

- [1] Y. Suzuki et al., to be published in Proceedings of XRM2002.
- [2] A. Takeuchi et al., J. Synchrotron Rad. 9 (2002) 115.
- [3] K. Yamauchi et al., J. Synchrotron Rad. 9 (2002) 313.
- [4] D. Gabor, Nature 161 (1948) 777.
- [5] W. Leitenberger and A. Snigirev, J. Appl. Phys. 90 (2001) 538.
- [6] N. Watanabe et al., to be published in Proceedings of XRM2002.
- [7] E. N. Leith and J. Upatnieks, J. Opt. Soc. Amer. 52 (1962) 1123.
- [8] Y. Suzuki, Jpn. J. Appl. Phys. 41 (2002) L1019.
- [9] Y. Kohmura et al., to be published in J. Appl. Phys.

### 2.2.5 オーバーサンプリング法を用いた物質の構造解析

X線は、その波長の短さから、ナノまたは原子分解能の顕微鏡を実現する潜在能力を持っている。レンズを用いた顕微鏡では、しかしながら、開口数の高いX線レンズは存在せず、その実現は困難である。一方、レンズを用いず、回折像の逆フーリエ変換を計算機上で実行し、実像再生を行う手法もある。この場合、回折像の位相は、実験では直接得られないため、何らかの手段で回復する必要がある。結晶試料に対しては、直接法や同型置換法などの位相回復法が確立されており、X線回折法は、原子分解能での結晶構造解析の主要な方法となっている。

X線回折に基づく結晶構造解析法を、空間的周期構造のない試料に拡張する試みが、近年 Miao 等により実現化した [1]。ここで、位相回復は、オーバーサンプリング法により行われた。このX線回折マイクロコピーの適用範囲は広く、単離された生体分子や、ナノ材料の構造解析にもおよぶ。競合する手法には、電子線顕微鏡が挙げられるが、X線のより高い透過性を活用する事により、例えば細胞全体など、透過型電子顕微鏡でも適用が困難な厚い試料にも、X線回折マイクロコピーを適用する事が出来る。

X線回折マイクロコピーの実現には、50年の歴史がある。標本定理の考察から、回折強度をオーバーサンプリングすることの必要性が、1952年に Sayre により指摘された [2]。オーバーサンプリングされた回折強度からの位相回復は、Gerchberg と Saxton による反復法の提案 [3] と、その後の Fienup による改良によるものである [4]。オーバーサンプリング法を、空間的周期構造のない試料のマイクロコピーに応用するアイデアは、Sayre によって提案された [5]。

図 2.21 上段左の回折像は、Nyquist レートでサンプリングされており、仮に、各サンプリング点で振幅と位相が与えられれば、逆フーリエ変換により試料像 (図 2.21 上段右) が再生される。しかし、実験では位相の情報は失われているため、試料像再生に必要な情報の半分が欠如している。オーバーサンプリング法では、回折強度をより細かくサンプリングする。図 2.21 下段左には、オーバーサンプリングされた回折像を示す。オーバーサンプリングされた回折像に対応する実像 (図 2.21 下段右) には、試料像の周りに、電子密度ゼロの領域が存在する。この電子密度ゼロ領域の情報が、オーバーサンプリング法の鍵を握る。電子密度ゼロ領域が、試料領域よりも大きければ、逆空間で失われた位相の情報よりも多くの情報が、実空間で与えられる事になり、試料像再生の必要条件が満たされる。



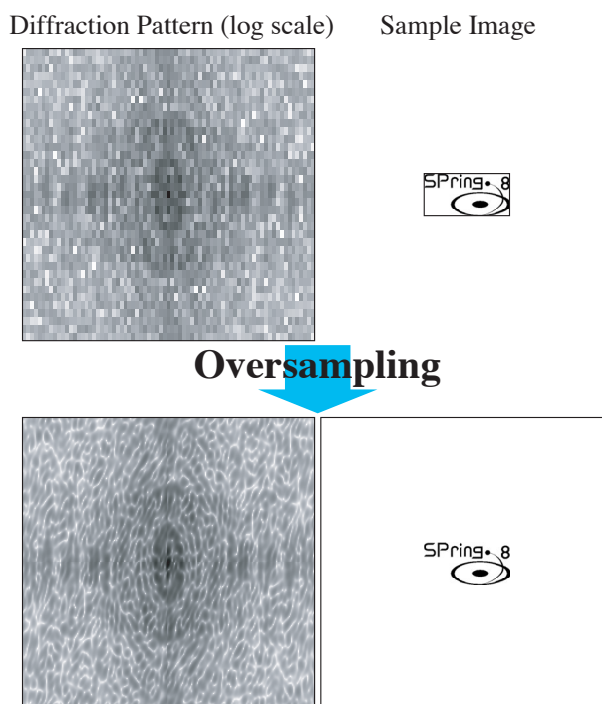


図 2.21: オーバーサンプリングされた回折像と実像の周りの電子密度ゼロ領域

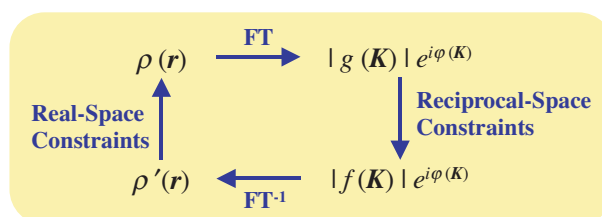


図 2.22: 反復法による試料像再生

試料像再生には、図 2.22 に示された反復法 [3] を用いる。出発点として、第ゼロ近似の電子密度分布  $\rho'(r)$  をとった場合、以下の 4 つの過程を経て、第一近似の電子密度分布を得る。(1)  $\rho'(r)$  に電子密度ゼロ領域の情報による拘束（実空間拘束）を付加し、拘束付き電子密度分布  $\rho(r)$  を得る。(2)  $\rho(r)$  のフーリエ変換から回折像を  $|g(K)| \exp(i\varphi(K))$  得る。(3) 回折像の振幅を、実験から決定された値  $|f(K)|$  に置き換える（逆空間拘束）。(4) 拘束付き回折像  $|f(K)| \exp(i\varphi(K))$  を逆フーリエ変換する。この過程を繰り返す事により、より高い近似の電子密度分布が得られる。反復法における収束の度合いは、 $\rho'(r)$  が電子密度ゼロ領域において、いかにゼロに近いかを指標に取る事が出来る。

空間的周期構造のない試料による回折像は、微弱でかつ、連続に分布している。これは、Bragg 点に局在した強いピークを与える結晶試料の回折像とは対照的である。微弱な回折強度の精密測定には、高輝度コヒーレント光が望まれる。入射 X 線に要求されるコヒーレンスは、試料位置において光源を見込む角 (RMS)  $\Delta\theta \leq \lambda/(2\pi Oa)$ 、相対波長幅 (RMS)  $\Delta\lambda/\lambda < d/(\pi Oa)$  である。ここで、 $\lambda$  は X 線の波長、 $Oa$  は電子密度ゼロ領域も含めた実像領域、 $d$  は空間分解能である。オーバーサンプリング法を用いた X 線回折マイクロコピーの最初の実験は、参考文献 [1] に、Miao 等によって報告された。NSLS において、波長 1.7 nm の軟 X 線を用い、回折強度が測定された。窒化ケイ素膜上に金粒子（直径 100 nm 程）で作られた文字パターンが試料として用いられ、空間分

解能 75 nm での二次元像再生に成功した。また、Robinson 等は APS において、同様の手法で、前方付近の回折強度ではなく、結晶のブラッグ反射点周辺の回折強度データを用い、金結晶（大きさ約  $1 \mu\text{m}$ ）の外形のイメージングを行った [6]。

さらなる空間分解能の向上を目指した、硬 X 線領域での実験が、現在、SPring-8 理研と SSRL との共同研究で、SPring-8 理研ビームラインで行われている。参考文献 [7] では、窒化ケイ素膜の表面および深さ  $1 \mu\text{m}$  の層にある、ニッケルの図形パターン（大きさは共に  $2.5 \times 2 \times 0.1 \mu\text{m}^3$ ）が試料に用いられた。図 2.23 には、波長  $2 \text{ \AA}$  の X 線による回折像と、オーバーサンプリング法による空間分解能 8 nm での二次元再生像を示す。表面パターンと深さ  $1 \mu\text{m}$  のパターンがオーバーラップして見え、X 線回折マイクロコピーが、厚い試料にも有効である事を示している。さらに各層のパターン像を分解するために、三次元フーリエ変換を用いた、三次元像の再生も行われた。図 2.24 には、様々な入射角で測定された、31 個の二次元回折像から得られた、三次元再生像を示す。空間分解能 50 nm が実現し、表面および深さ  $1 \mu\text{m}$  のパターンがはっきりと識別できる。この実験により、X 線回折マイクロコピーが nm オーダーの空間分解能を有する事が実証された。今後、検出器の改良等を行えば、原理的には原子分解能を持たせる事も可能である。

さらに、SPring-8 理研と SSRL との共同研究により、応用を視野に入れた実験も進められている。現在までに、大腸菌の内部構造の観察 [8] や、多孔質シリカ内部の電子密度分布の測定 [9] に成功している。図 2.25 は、オーバーサンプリング法によって再生された大腸菌内部の  $\text{MnO}_4$  で染色された蛋白質の分布構造を示す。波長  $2 \text{ \AA}$  の X 線を用い、25 nm の空間分解能を実現している。これは、生物試料に対する、X 線回折マイクロコピーの最初の適用例である。これまでの実験から、X 線回折マイクロコピーが、生物試料やナノ材料の構造解析に有効である事が示され、今後、これらの分野での研究に威力を発揮するものと期待される。将来的な応用として、結晶化されていない生体分子の構造解析（単粒子解析）も議論されている。生体分子試料に対しては、X 線照射による損傷が大きな問題となる [10]。X 線 FEL の様な、サブピコ秒の時間幅をもつ大ピーク強度 X 線源が実現すれば、単パルス照射時に、試料が破壊される前に回折強度データを取得できるとの試算もある [11]。X 線 FEL を用いた単粒子解析実験のシミュレーションも行なわれており、その可能性が示唆されている [12]。

西野吉則（SPring-8）

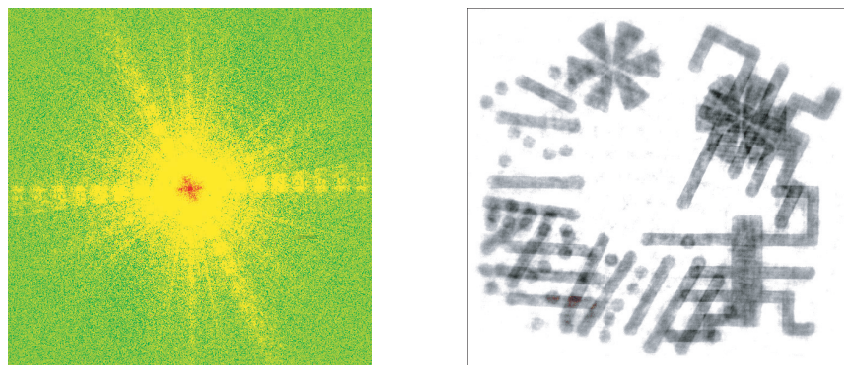


図 2.23: 試料の回折像（左）と、オーバーサンプリング法によって再生された二次元射影像（右）[7]。

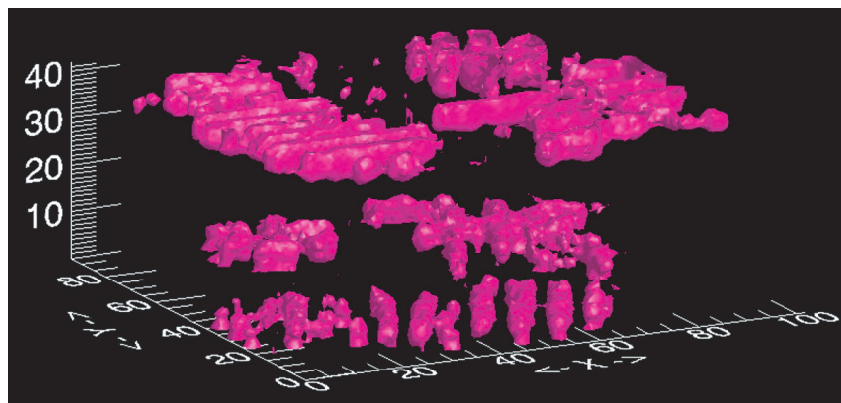


図 2.24: オーバーサンプリング法によって再生された試料の三次元像 [7]。各軸の単位は 25 nm。

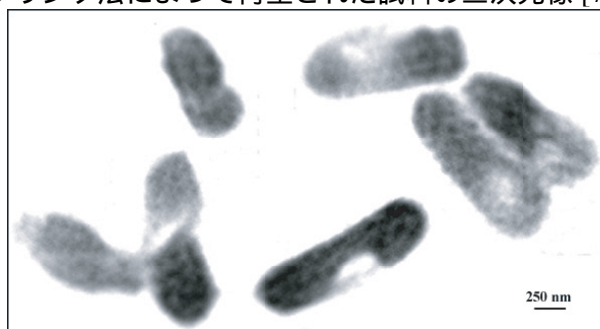


図 2.25: オーバーサンプリング法によって再生された大腸菌の内部構造 [8]。

## 参考文献

- [1] J. Miao, P. Charalambous, J. Kirz, and D. Sayre, *Nature (London)* 400 (1999) 342.
- [2] D. Sayre, *Acta Crystallogr.* 5 (1952) 843.
- [3] W. Gerchberg and W. O. Saxton, *Optik (Stuttgart)* 35 (1972) 237.
- [4] J. R. Fienup, *Appl. Opt.* 21 (1982) 2758.
- [5] D. Sayre, in *Direct Methods of Solving Crystal Structures*, ed. H. Schenk (Plenum Press, New York, 1991) p. 353.
- [6] I. K. Robinson, I. A. Vartanyants, G. J. Williams, M. A. Pfeifer, J. A. Pitney, *Phys. Rev. Lett.* 87 (2001) 195505.
- [7] J. Miao, T. Ishikawa, B. Johnson, E. H. Anderson, B. Lai, and K. O. Hodgson, *Phys. Rev. Lett.* 89 (2002) 088303.
- [8] J. Miao, K. O. Hodgson, T. Ishikawa, C. A. Larabell, M. A. LeGros, and Y. Nishino, *Proc. Nat. Acad. Sci. USA* 100(2003) 110.
- [9] J. Miao, J. Amonette, K. O. Hodgson, T. Ishikawa, and Y. Nishino, in preparation.
- [10] R. Henderson, *Q. Rev. Biophys.* 28 (1995) 171.

- [11] R. Neutze, R. Wouts, D. van der Spoel, E. Weckert, and J. Hajdu, *Nature (London)* 406 (2000) 752.
- [12] J. Miao, K. O. Hodgson, and D. Sayre, *Proc. Nat. Acad. Sci. USA* 98 (2001) 6641.