

## **Appendix I**

PF将来計画作成に関するご協力をお願い

ユーザーグループ からの提案 (UGとしての登録順)

1. XAFS
2. 放射線生物
3. 構造物性
4. コンプトン散乱
5. 表面化学 (提案内容については2.1.4参照)
6. 固体分光I
7. 核共鳴散乱
8. 位相コントラスト
9. X線反射率

## **Appendix II**

PF将来計画に関する研究会

## **Appendix III**

報告書作業メンバー

## Appendix I : ユーザーグループからの提案

放射光将来計画に関して、PF ユーザーグループ代表に「PF 将来計画作成に関するご協力  
のお願い」(2002, 9, 3 付け)を送付した。その結果9グループから回答を得た(全20グ  
ループ。2003.2 現在)

### PF 将来計画作成に関するご協力のお願

放射光研究施設 松下 正

PF の将来計画に関し、PF シンポジウム、PF News などを通じてお知らせしてきました  
が、計画を具体化する第一歩として、KEK 加速器研究施設と合同で本年末を目処にデザイ  
ンレポートをまとめることを計画しています。計画の概要は、ERL(Energy Recovery Linac :  
エネルギー回収型線形加速器)に特長を持たせた蓄積リングとの複合計画です。内容に関し  
ては PF 新光源計画および ERL 光源の概要についてのホームページを準備しましたのでご  
覧ください。

PF 将来計画 URL [http://pfwww.kek.jp/outline/pf\\_future/pf\\_futureplan.pdf](http://pfwww.kek.jp/outline/pf_future/pf_futureplan.pdf)  
掲載した光源の仕様・性能は、3 月の PF シンポジウムでの提案をもとに概要をまとめたも  
のです。現在行われていますシステムとしての feasibility study の進行に伴い変更され  
ることにご注意ください。

本将来計画に関して、これまでも所内では PFII 検討世話人会が中心となり素案をまと  
めてきましたが、この夏より運営協議委員会の下 PF 将来計画 WG に、加速器作業 G と  
利用研究作業 G が形成され具体的な作業を開始しました。利用研究作業 G (以下利用 G と  
略)では Instrumentation および Scientific case についてのまとめの作業を行うことになっ  
ています。デザインレポートを完成させるためには、利用研究に関する多くの新しいアイデ  
アを広く集めまた深化させる作業が必要となります。このために PF 懇談会ユーザーグ  
ループの皆様のご協力を是非お願いいたします。7月16日に開催されたPF懇談会運営委  
員会におきましても、「将来計画利用専門委員会」(高橋敏男委員長)が設置されること  
が承認されております。7月27日には佐々木会長より PF の将来計画に関するお知らせが  
既に皆様にも届いていることと存じます。

ERL はまだ誰も経験したことがない光源ですので、斬新なアイデアが期待されます。また今回の計画ではリング状のリターンパスが多く、ユーザーの利用希望を入れるものとして必須の部分と考えられます。広範な研究分野で活躍されている皆様のアイデアは不可欠の要素と考えられます。

このような点をご理解頂き、ユーザーグループとしてのご協力をいただけますようお願いいたします。

ERL 利用研究に対するユーザーグループとしての scientific case の提案を12月にまとめるデザインレポートの中に含めたいと考えております。お忙しいところ大変恐縮ですが、全体計画へのフィードバックなどを行うため 10 月中旬頃をめどにユーザーグループとしての提案を取りまとめていただければ幸いです。提案様式は自由ですが、提案1件につき、要旨1ページ、説明図版1～2枚（いずれもA4）を目安とお考えください。

提案の提出先は下記宛にお願いいたします。添付ファイルでお願いします。

PF 秘書室 e-mail:pf-sec@pfiqst.kek.jp

添付ファイルが困難な場合は郵送（PF 秘書室宛）でも結構です。

この件に関する問い合わせは私またはユーザーグループ所内担当者をお願いいたします。

PF 将来計画に関する要望などもございましたら併せてお伝えください。またユーザー個人としての提案も、上記あるいは関連する PF スタッフにお伝えください。また逆に所内のスタッフからご協力をお願いすることもあります。よろしくお願いいたします。

この秋には PF において将来計画に関するいくつかの研究会を開催し、またセミナーも随時開催いたします。ユーザーの方のご参加をお願いいたします。詳細に関しては PF ホームページ(<http://pfwww.kek.jp/indexj.html>)をご覧ください。

PF 将来計画が今後の放射光研究の方向性を提案するものとなるよう皆様のご協力をよろしくお願いいたします。

## PF 将来計画についての提案・意見

### 【XAFS グループ】

世話人 島田広道（産業技術総合研究所）

XAFS ユーザーグループは登録者数のみで約 118 名を有し、7C, 9A, 10B, 11B, 12C などのビームラインで相当程度のマシンタイムを使って積極的に研究を行っています。一方、まだまだ理論の精緻化が残されているとはいえ、XAFS の実験手法は概ね確立されています。また、多くのメンバーが材料系研究者であり、XAFS を唯一のツールとして利用しているケースは他のユーザーグループと比べて決して多くはない状況かと思えます。

このような XAFS ユーザーの性格上、ほとんどのメンバーは長期間の運転停止を伴う大規模な光源の改造・新設についてはできれば避けていただけないかと考えております。他方、PF およびスタッフの使命については十分に承知しており、PF 将来計画が新たな science の提案と一体となって立案され、適切な時期に実行されることを願っております。

XAFS ユーザーグループでは今年 3 月の PF シンポジウムにあわせてのミーティングに引き続き、8 月の XAFS 討論会を利用してミーティングを開き、今後の XAFS グループの展開に向けての議論を行って参りました。今回の提案募集については、グループメンバーに呼びかけ、添付の 2 提案を取りまとめた次第です。いずれの提案も ERL 光源の低エミッタンス、短パルス性を活用しており、既存の PF では困難な science case です。

ただし、両提案をなさった方を含めて、ほとんど全てのメンバーは蓄積リング型光源の設置を強く希望しています。「PF 将来計画」の 2002 年 8 月 version では ERL と蓄積リングを組み合わせた光源となっており、XAFS ユーザーグループとしても、将来の PF においても引き続き、ERL の特徴を生かしつつ多くのユーザーが利用できると考えています。（この背景は、上記 XAFS ユーザーグループの性格からご理解いただけるかと存じます。）

XAFS ユーザーグループとしては、**多くのユーザーを抱えられる蓄積リング型光源の設置を強く希望することを最大意見とし**、ERL の「低エミッタンス」、「短パルス」、「ナノビーム」などの特性を利用した研究提案として添付の 2 提案を行うことといたしたいと思います。

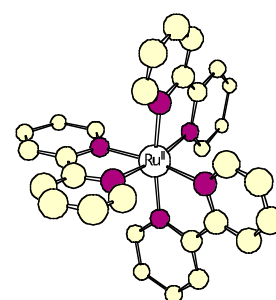
## 提案 1 : 時分割 XAFS 法による光励起金属化学種の局所構造解析と反応メカニズムの解明

### 1. はじめに

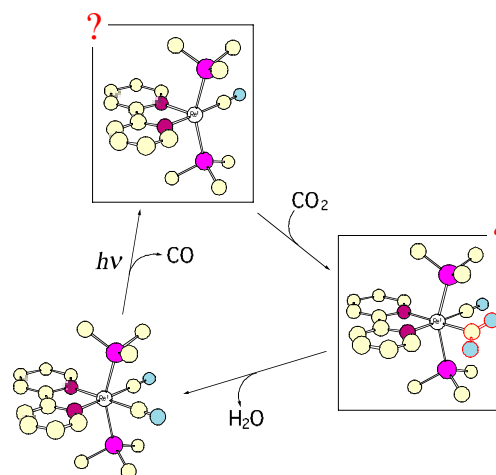
光励起によって生成する配位不飽和低原子価金属化学種は、その金属中心近傍に反応相手となる物質を選択的に取り込み、高効率で還元する極めて有効な反応場である。しかしながら、光励起によって引き起こされる結合配位子の脱離が触媒作用と密接に関連していることは明らかになっているものの、その光励起状態の構造に関する知見が皆無であることから、活性化学種の電子状態との関連などは推測の域を脱していない。本提案は時分割 XAFS 法により、活性状態にある化学種の構造解析を行い、反応メカニズムを解明しようとするものである。

### 2. 研究内容

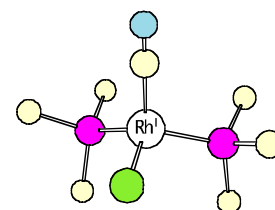
二酸化炭素を光還元する触媒系として、可視光で駆動する光増感剤と二酸化炭素へ電子供与する電子媒介触媒を組み合わせた数多くの系が提案されている。その一例として、可視光駆動光増感剤として  $\text{Ru}(\text{bpy})_3^{2+}$  ( $\text{bpy}=2,2'$ -ビピリジン、右図)、電子媒介触媒として  $\text{Ru}(\text{bpy})_2(\text{CO})_2^{2+}$  を用いる系では、光励起した  $\text{Ru}(\text{bpy})_3^{2+}$  が  $\text{Ru}(\text{bpy})_2(\text{CO})_2^{2+}$  を二電子還元して生成する低原子価配位不飽和化学種 ( $\text{Ru}(\text{bpy})_2(\text{CO})^0$ ) が二酸化炭素と結合し、還元すると考えられている。



また、光増感剤と電子媒介触媒の両方の機能を有する物質として幾つかの Re 錯体 ( $\text{Re}(\text{bpy})(\text{P}(\text{OEt})_3)_2(\text{CO})_2^+$  など) が考案され、その触媒機能が実証されているが(右図は推定されたスキーム)、錯体構造の変化を伴う過程についての反応メカニズムは解明されていない。これらの物質を用いた二酸化炭素の光還元系を確立する、あるいは、さらに高い効率を有する触媒系を構築するためには、その反応機構を原子レベルで詳細に解明することが必要不可欠であるが、従来の電子スペクトルや振動スペクトルをプローブとした観測を光励起後の反応系に対して適用する手法では、反応に関与する活性化学種の構造を決定することは不可能である。



また、光励起によって生成する配位不飽和低原子価金属化学種は、その金属中心近傍に反応相手となる物質を選択的に取り込み、高効率で還元する極めて有効な反応場である。 $\text{RhCl}(\text{CO})(\text{PR}_3)_2$  ( $\text{R}=\text{アルキル基}$ 、右図) 類は光励起によって  $\text{CO}$  が脱離し、共存するアルコールやアルカンを脱水素化する触媒となることが知られている。これらの系では、光励起によって引き起こされる結合配位子の脱離が触媒作用と密接に関連していることは明らかであるが、その光励起状態の構造に関する知見が皆無であることから、活性化学種の電子状態との関連などは推測の域を脱していない。

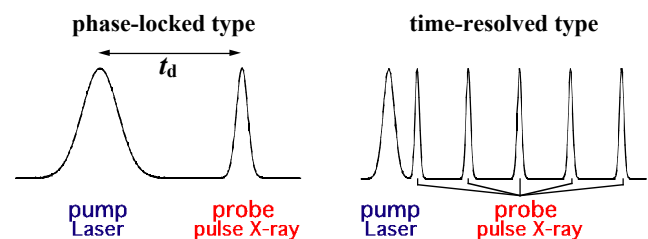


以上のように、光励起金属化学種は様々な反応系での触媒として高い有用性が期待されて

いる。また、そのような触媒系でのキーワードは低原子価配位不飽和金属化学種である。したがって、反応中心となる金属原子近傍の局所構造を明らかにすることができれば、推定されている反応機構に対する直接的な証拠が得られるのに加えて、さらに高効率な反応系を構築するために重要な化学的知見が得られると期待される。これらの光励起化学種はピコからナノ秒領域の寿命を持つものが大部分であるため、その寿命よりも十分に短い時間幅（ピコ秒以下）のパルス X 線をプローブ光とする時分割 XAFS 法を用いて初めて、その局所構造を精密に決定することが可能になる。さらに、XAFS から得られる動径関数は金属中心からの距離を指標とする部位選択的情報であり、時分割 XAFS 測定によって各部位ごとの時間変化を速度論的に取り扱うことにより、触媒反応のメカニズムをさらに詳細に解明することができると期待される。

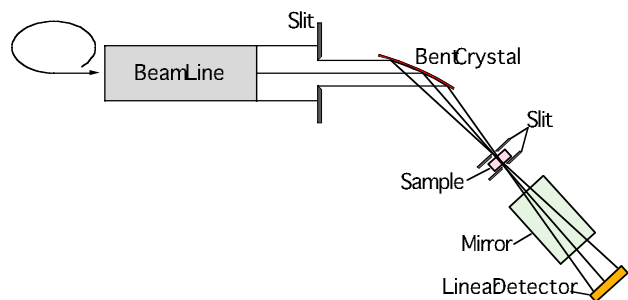
### 3. 具体的実験方法

光励起金属化学種の時分割 XAFS 測定は、光励起状態を生成する紫外・可視・赤外領域のパルスレーザーによるポンプと ERL から得られる短パルス X 線によるプローブを組み合わせる。ポンプ光とプローブ X 線の時間間隔をずらしながら



phase-locked 型で測定することにより、ポンプ光あるいはプローブ光のパルス幅の長い方の時間スケールまでの時分割 XAFS 測定を行う。一方、一定の時間間隔で ERL から発生するパルス X 線のシーケンスを用いた time-resolved 型での測定により、プローブ X 線のパルス間隔に対応する時間スケールの時分割 XAFS 測定も目的とする。

X 線光学系としては、基本的には、上流に設ける分光器で単色化したパルス X 線をプローブに用い、各 X 線エネルギーごとに試料への入射 X 線強度と試料からの透過 X 線強度を時分割測定する方式とする。ただし、一次元検出器でのデータ読み出しをプローブ X 線のパルス間隔内に終了することができる状況であれば、右図のような分散型光学系を用いることにより、XAFS スペクトルを得るのに必要な X 線エネルギー領域全体を同時に測定することも可能である。いずれの光学系での測定においても、試料内に存在する対象元素の一部が光励起状態に変化したことによる X 線吸光度の時間変化を追跡することになる。



## 提案2：全反射 XAFS 法などによる界面、表面研究

### 1. 目的

2相界面の問題は、古くから界面科学として様々な研究対象として扱われてきた。本提案では、全反射 XAFS 法などを適用して、気固、液固、気液界面の構造解明を目的とする研究を提案する。また、X線をナノオーダーに絞り込むことで、液液、気気、固固界面研究への XAFS 研究の展開も提案する。

### 2. 研究の必要性、背景

界面の研究は古くは鉄鋼の防食、界面活性剤に始まり、近年では、量子井戸構造などの電子デバイス、センサー、燃料電池、環境触媒、親生体材料など幅広いしかも重要な分野において、中心的な役割を占めている。しかし、その構造に関する情報は、近年になって、様々な物理化学的手法によるキャラクタリゼーションが可能になった結果、ようやくその一部が明らかになり始めているにすぎない。

XAFS は、物質構造を特定し、電子状態を調べる有力な手法であるが、X線の透過力が高いため、界面近傍の情報を選択的に XAFS から得ることは難しい。そこで、本提案では、ERL-放射光を光源として用いる界面構造を特定する新たな XAFS 法の研究を行う。

### 3. 具体的提案内容 1

概要： 全反射 XAFS 法、X線は屈折率が1に近いので、ほとんど界面を直進するが、界面にすれすれの角度で入射し、全反射を起こすことができれば、X線は界面に平行に進行する evanescent 波となるため、界面選択性が飛躍的に増大する。また、全反射角で X線を検出することによっても同様の界面選択性が期待される（図1 参照）。これにより従来難しかった表面基板に高分散した金属の構造研究ができるようになった（図2参照）。

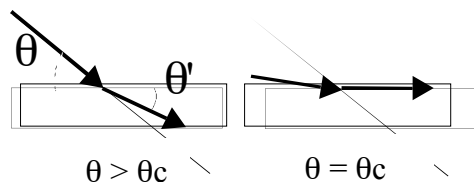


図1 臨界角より入射角が大きいときは、ほぼ直進するが、臨界角程度になると、界面すれすれに走る evanescent 波を形成し、界面敏感性が増す。

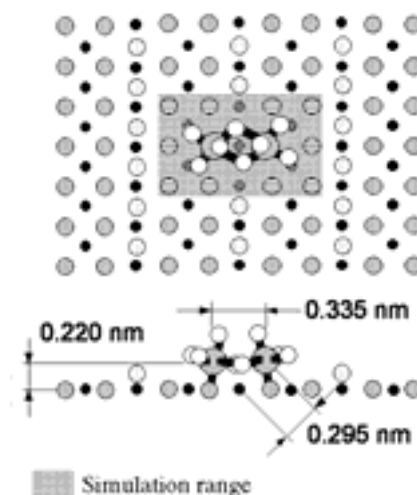


図2  $\text{TiO}_2(110)$  単結晶表面における Mo ダイマーの立体構造解析

全反射法の欠点はすれすれに入射しなければならないため、大面積を有するサンプルを必要とした。ERL 光源の低エミッタンス性を活かすことにより、従来測定が困難であった微小試料（例、結晶成長に限界がある単結晶など）を対象とすることができる。また、入射角を精確に制御することにより、サンプル全体に光を行き渡らせることで、局所的に光集中した結果起こるサンプルダメージの軽減も図ることができる。

技術的問題点：一方において、高いコヒーレント光である ERL を用いることで、干渉縞を表面に作る畏れがあり、規格化をいかにするかという問題が出てくることが予想される。このため、サンプル調製や検出法（位置分解能を持つ）の開発が必要と考えられる。

#### 4. 具体的提案内容 2

概要：全反射は、2相の屈折率の違いを利用して界面敏感にする手法であるが、気気、液液、固固界面等、屈折率の変化が乏しい系では、この手法は用いることはできない。最も簡単な界面研究法として、ERL を光源とする nm オーダに絞った X 線を界面付近に照射し、透過光、散乱光、蛍光を検出することにより界面選択 XAFS を得ることが可能となる。特に XGT 技術がさらに進歩することにより、数十 nm の選択性も可能であり、nm オーダの位置の微調を行うことで、差分スペクトルから nm オーダあるいは原子レベルの界面選択 XAFS も可能と考えられる。

技術的問題点： nm オーダの位置微調法は、STM 等の探針の走査技術を応用することで可能であるが、界面に平行な光をいかに作るかという点が、今後解決すべき課題と考えられる。



## 【放射線生物グループ】

### コヒーレント軟X線を用いたDNA損傷生成過程と修復酵素反応の動的過程研究の可能性

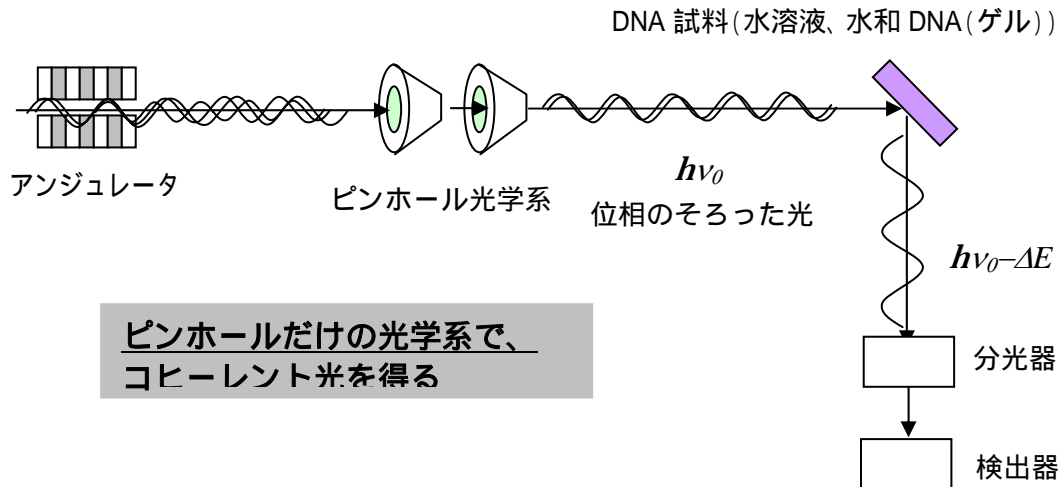
日本原子力研究所・放射光科学研究センター 横谷 明德

はじめに:

新しいPFの超低エミッタンス高輝度光源を利用することで、放射線生物の分野ではこれまで行われたことのないような新しい実験テーマが可能になると思われる。超エミッタンス光源であれば、ピンホールなどのシンプルな光学系を用いることで、良質なコヒーレント光が得られ、これを積極的に用いることで、DNA損傷生成過程のみならず、損傷DNAと修復酵素タンパク質の反応の動的過程の研究が可能になると期待される。

#### (1) 共鳴ラマン散乱を利用した DNA 及び DNA 損傷過程

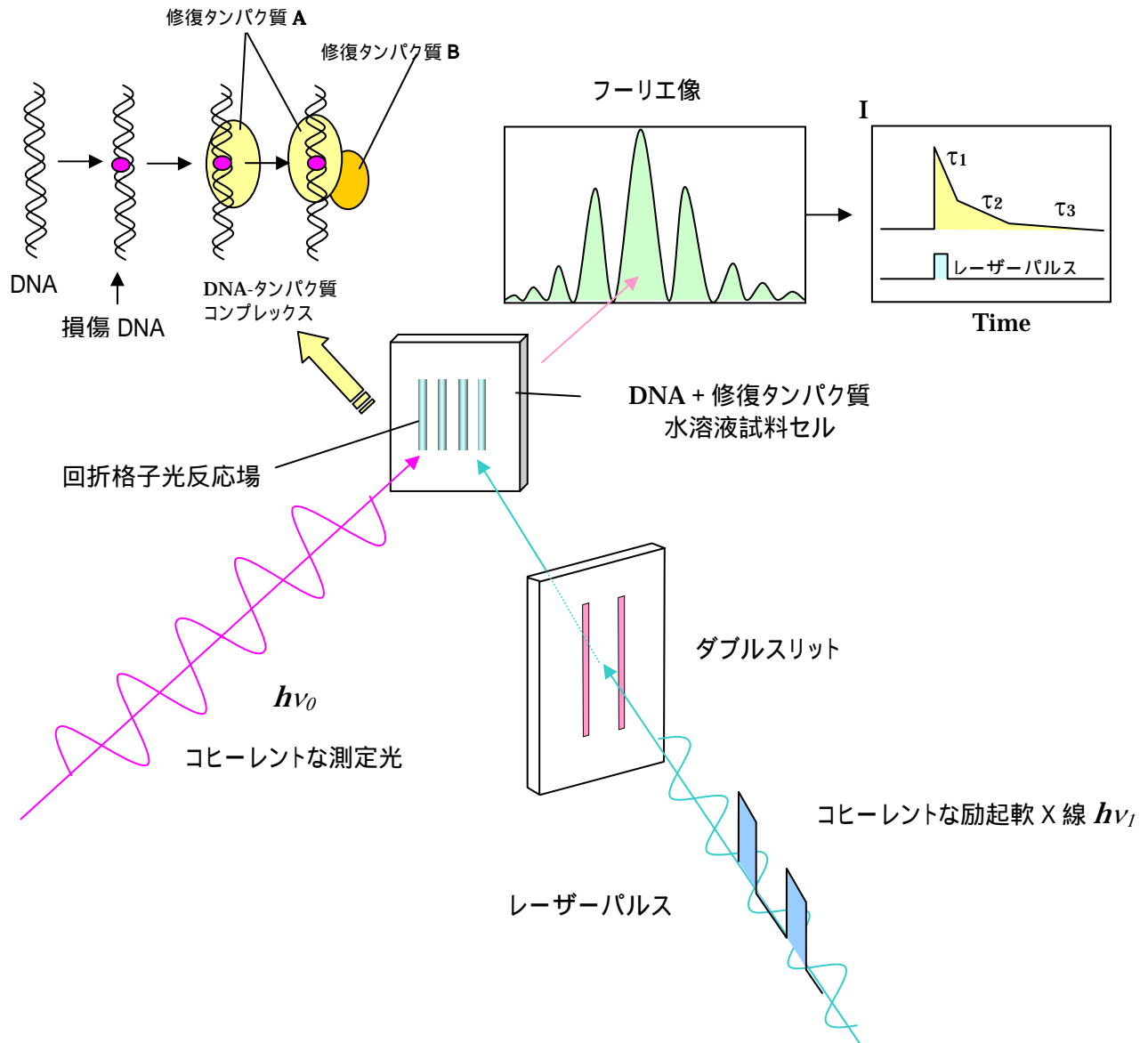
軟 X 線領域に存在する DNA 中の特定原子の固有のエネルギー近傍で起こると予想される、強い散乱(共鳴ラマン散乱)を測定する。 $h\nu_0$ と DNA 固有の振動・回転などフォノンとの相互作用した後のフォノンの振動数の変化を、ラマンスペクトルとして得る。このスペクトルが、レーザーの繰り返し照射によりどのように変化するかを調べることで、DNA 損傷を構造変化や物性変化の情報として得る。特に DNA のフェルミレベル近傍での価電子帯と非占有軌道(LUMO)に関する電子状態の変化は、それ以後の DNA 分子上の hole/electron 移動のしやすさに関係するため、複数の DNA 損傷が近接して生じることで生成する“クラスター損傷”生成に大きく影響すると予測される。クラスター損傷は、その複雑さゆえに、生体修復酵素がもはや修復できないため、突然変異や発ガンなどの生物影響に直接関係すると言われている。



#### (2) 回折による局所反応場形成 (Transient Grating 法) による DNA - タンパク質反応

励起光源として X 線レーザーパルスを用い、ダブルスリットにより試料セル上に回折させ、励起される部分とされない部分がサブミクロンレベル(数十～数百 nm?)の格子状になるようにする。その

結果、格子反応場中の DNA に損傷が生じ、これを修復タンパク質が認識した場合にのみ DNA とタンパク質のコンプレックスが形成される。この試料セルに対しさらに二番目のレーザー（測定光）を入射する。コンプレックス形成に伴う屈折率など光学的性質の変化は、試料セル後方の検出器にフーリエ回折像として結像される。励起光のパルス特性を利用し、回折光強度の時間変化からコンプレックス形成に伴う、反応速度定数や拡散緩和時間の変化が得られる。さらに別のタンパク質が結合したり、あるいは多量体を形成したりした場合、その結合・解離の動的構造や状態についての情報を得ることができると期待される。



## 【構造物性グループ】

ERL 利用研究 --- 構造物性グループからの提案 ---

東北大・理 村上洋一

KEK PF 澤 博

構造物性グループから、ERL の A. パルス性、B. コヒーレンス、C. 微小サイズビーム、D. 大強度、を利用した研究として、下記の7つの研究を提案致します。ただし、現段階では、これらの提案は抽象的なものです。具体的な物質ターゲットは決まっておらず、おもしろそうな研究項目をあげたに過ぎません。また、これらの研究に必要なビームの特性に対する数値目標を挙げている訳でもありません。ここで提案する研究内容は、現在の研究の自然な延長線上にあるもので、実現可能であると思われるものが多いと思います。反面、非常に画期的で、できるかどうか分からないが、できた時には極めてインパクトの強い大発見であるというような提案は、残念ながらありません。今後は、このような大胆な計画も提案できるようになりたいと思っています。

なお、これらの提案は、グループ内で十分に議論したものではありません。今後、グループ内での議論を深め、研究計画の具体化を図っていく必要があると思っています。

### A. パルス性を利用した時分割測定を用いた研究

近年フェムト秒レーザーによるポンプ&プローブ法によって物質の光誘起現象の時分割解析が進んでいる。この分野では主に光による励起と光の反射率、透過率などを時分割測定することによって物性の過渡現象を研究しているが、これらは化学の分野での反応過程の解明や、光デバイスなどの超高速素子などの応用的な側面から注目を集めている。物理現象としてみたときに、これらの光誘起現象の中間状態は、単なる過渡現象ではなく、準安定状態の存在と相平衡状態という観点からも大変重要であると考えられている。我々、構造物性グループとしては、これらの現象を時分割散乱、時分割構造解析という手法を用いて原子レベルでの解析を行うことを提案する。

構造解析的な手法を適用するためには、二通りの方法がある。ひとつは、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、パルスX線の切り出しを行う高速シャッターとこのパルスX線に同期させたレーザー光などの外場の照射を用いた測定で実現できる。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、ERLなどの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。

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ことが期待される。

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ERLに大きく期待されることである。

## B. コヒーレンスを利用した研究

### 電荷・軌道秩序の相転移と臨界現象の研究

軌道縮退がある強相関電子系の場合には、電子は電荷・スピン・軌道という自由度を持ち、それらの秩序化に伴う相転移が、多くの化合物で観測されている。これまで、中性子散乱などを中心として、スピン系の相転移やその臨界現象の研究は、古くからなされ、多くの成果を挙げてきた。それは、スピン系が、多彩な相転移現象を理解するための単純なモデル系として働き、相転移や臨界現象の普遍的な特徴が抽出されたからである。一方、スピン秩序と比較して、電荷秩序や軌道秩序に関する相転移・臨界現象はこれまでに多くの研究が蓄積されているわけではない。それは、スピン系に対する中性子散乱のような適切な実験手法が、電荷・軌道秩序系に対して、極めて限られていたためであると考えられる。最近、我々のグループでは、**共鳴 X線散乱法** (RXS) を用いた、電荷・軌道秩序を観測する手法の開発に成功した。本提案は、RXS を用い、かつビームの高いコヒーレンス性を利用することによる、**電荷・軌道秩序系の相転移研究**の提案である。

電荷・軌道秩序の相転移は、1次相転移の場合もあるが、2次相転移の様相を示す多くの系が存在する。特に、低次元系においては2次の相転移のように見える。このような系に対して、スピン系とのアナロジーから、相転移における**ユニバーサリティ (クラス)**がどのようなものになるか、興味深いところである。すなわち、スピン系で確立されたユニバーサリティが電荷・軌道秩序系においても保たれているかどうか、実験的に調べる必要がある。RXS を適切に用い、電荷・軌道秩序からのブラック散乱や散漫散乱を精密に測定することにより、系の電荷・軌道秩序変数の発展の様子を測定し、臨界指数の決定を行うことができると考えている。そのためには、ビームの高いコヒーレンス性、高輝度が是非とも必要である。

これらの研究の中でも**軌道秩序系のメカニズム**の研究は特に重要である。その秩序化の相互作用として、フォノンを介したいわゆるヤーン・テラー機構によるものと、電子の超交換相

相互作用によるものが提案されている。傾向としては、3d電子系においてはヤーン・テラー機構が、4f電子系においては超交換相互作用が優勢であると考えられているが、現段階ではこれらを明確に区別して議論することはできていない。相互作用が違えば、それぞれ違うユニバーサリティクラスに属するので、本提案での臨界現象をとおして、この軌道秩序形成の機構を探ることができる。このような基礎研究は、地味ではあるが、広い適用範囲を持つ普遍的な法則の探求として、先端的なビームを利用した研究としてふさわしいものであると考えている。

## C. 微小サイズ・高輝度ビームを利用した研究

### 1. 極限条件下における構造物性研究

ERLからのビームは、縮小光学系を用いることによって、**直径 10 nm サイズの高輝度ビーム**となる可能性がある。この特徴は、極限条件下における構造物性研究に大変望ましいものである。すなわち、**高圧・高温・強磁場**などの極限条件を達成できる**空間サイズは、非常に小さい**ものである場合が多いからである。

#### (a) 超高圧下でのX線磁気散乱を用いた研究

X線磁気散乱は、極めて微弱な信号を捕まえないとできないため、放射光を利用してもその検出は容易ではない。しかし、それを利用して得られる情報は、中性子散乱では抽出することのできない、スピン・軌道角運動量が分離された貴重な情報が多い。ここでの提案は、この**X線磁気散乱**を、**ダイヤモンドアンビルセル (DAC)**を用いた超高圧下で行うというものである。ただでさえ弱いX線磁気散乱をDAC中でやるという二重苦の実験ではあるが、ERLからの微小・高輝度ビームを使うことによって、可能性が出てくるのではないかと考えている。

非常に大雑把に述べると、絶縁体の磁性体においては、高圧下では電子の交換相互作用は多くの場合大きくなるので、磁気転移点は上昇するだろう。しかし、さらに高圧下では、電子に遍歴性が生じ、最終的には金属化し、磁性を保つかどうか疑問である。例えば、酸素のような単純な系において、このような磁性の圧力変化を測定することは、極めて有意義な基礎研究であると考えている。一方、クロムのような電荷密度波 (CDW) とスピン密度波 SDW が同時に生じている金属に超高圧をかけたときにどのように SDW が変調を受け消失するか、フェルミ面のネスティングの観点からどのように理解できるかなども興味深い問題である。

#### (b) 超高圧下での構造と超伝導の研究

最近の高圧下での超伝導研究の発展は著しい。複雑な化合物でなく、単純な系において、多くの驚くべき現象が報告されている。例えば、ヨウ素、臭素だけでなく、酸素や鉄、最近ではリチウムまで、超高圧下では超伝導状態が基底状態であることが、実験的に明らかになってきた。この調子でいくと、水素の超伝導を目にする日も来るかもしれない。しかし、これらの単純な系においても、**超高圧下での構造の詳細**を知ることは容易なことではない。これらの

系の超伝導が通常の BCS 超伝導であるのかどうかはこれからの研究課題であろうが、そのとき、詳細な構造研究は是非とも必要とされる場所である。通常の構造解析にとどまらず、電子密度分布が細部でどのようなになっているかを知ることが必要とされている。

#### (c) 高温高圧下での相転移の研究

現在でも高圧構造物性グループは、DAC とレーザー加熱を併用して、高温高圧下での構造を調べることによって、地球内部の物質構造情報を得たり、高圧下での特異な相転移の観測を行い、多くの成果を挙げている。本提案は、試料サイズをより微小にすることにより、より高圧・高温までの測定を可能とするものである。また、単に各相での構造決定にとどまらず、温度・圧力変化に伴う、構造相転移の研究も重要な課題である。技術的には、このような研究の先には、放射光とレーザー光の同期を取ることで、高圧下での**光励起相転移現象の観測**などが、視野に入ってくるだろう。

#### (d) パルス超強磁場中での構造相転移

現在、我々のグループでは、JT 型クライオスタットのコールドヘッドに装着できる、数 cm 大の**パルス電磁石**の開発を行っている。数十テスラの超強磁場を低温でかけながら、放射光 X線回折が行えるような装置を目指している。この装置においては、入射ビームと散乱ビームの取り出し空間が制限されているだけでなく、試料サイズも制限されるため、微小ビームは非常に有用である。現在のところ、電磁石パルス幅は msec であるので、ビームとの同期の問題は生じない。このようなパルス電磁石を使い、**低温・強磁場下での構造相転移**の問題や、X線磁気散乱を利用した**スピン構造の問題**、さらには、**磁場中相転移（電荷・軌道融解）**の問題に取り組むことを計画している。

## 2. ナノ X線ビームによるマイクロ相分離系の研究

強相関電子系においては、外場や電子密度の僅かな変化により、系が電氣的・磁氣的性質の全く違う相へ相転移することがよく観測される。すなわち、物性は全く違うが、その自由エネルギーが極めて近い複数の相が、相図の中で非常に近い場所に存在している。その最も典型的な例では、系は複数のマイクロな相に分離している。**巨大磁気抵抗物質**で観測される顕著な物性は、この相分離状態の強く依存していると考えられている。また、**高温超伝導体**などで観測される、ストライプ秩序も広義に**相分離状態**であると考えれば、このような系の不均質状態は、その物性を生じさせる本質であるとの見方もできる。しかし、これらの相分離がマイクロにどのように存在しているか、なぜ相分離が生じているかなど、現在のところ明らかでない。本提案の研究では、X線ビームを**直径 10 nm サイズまで集光**することによって、一時に一つの相だけ選び出して（共鳴）X線散乱を観測することにより、各相での電子の電荷・スピン・軌道の構造を明らかにし、また、各相がどのような形を持って相分離しているのかについての情

報を得る。これらの情報より、相分離状態と物性との関連を議論する。

## D. 大強度を利用した研究

### 1. X線非弾性散乱による電子励起の研究

固体中の**素励起の分散関係**を求めることは、その巨視的物性を理解する上で極めて重要な仕事である。最近の放射光輝度の向上と測定技術の発展により、X線を使った非弾性散乱実験も**エネルギー分解能が meV まで向上**し、詳細に**電子励起の分散**を求めることができるようになってきた。

このような素励起を測定する実験手法はいろいろあるが、最も直接的に、しかもその分散関係まで求めることができるのは、中性子散乱であろう。しかし、この中性子散乱も万能ではなく、大きな試料サイズが必要であることや、中性子と相互作用するフォノンやマグノンという素励起に観測が限られることなどがあり、物性を総合的に理解するためには、他の強力な測定手段が必要であった。X線非弾性散乱は、ある部分では中性子散乱と相補的な実験手段となり得る非常に有用な実験手法であると思われる。

例えば、現在我々が研究に取り組んでいる素励起は、**軌道励起**といわれる、秩序した電子軌道状態からの励起である。この励起は、軌道の個別的励起と集団的励起（軌道波）に分けられる。丁度、スピン秩序系からのストーナー励起とスピン波励起に対応するものである。現在のところ、個別的励起の観測には成功しているが、軌道波励起の分散を観測するには至っていない。その主な理由は、十分に高いエネルギー分解能で測定を行うには、ビーム強度が十分でないからである。このような他の手法では観測の困難である素励起に対して、ERL からの大強度X線を利用することにより、その精密な分散を測定することも可能になるだろう。

一方、例えば**フォノン分散**の測定に関しても、**有機系物質**のように大きな結晶を得ることが困難である系に対しては、中性子散乱によって測定することができない。一方、X線を用いると、mm サイズ以下の結晶であっても、十分に測定を行うことができる。有機系物質におけるスピンパイルス状態や SDW 状態からの素励起の観測は、格好の研究対象となるだろう。また、最近では高温超伝導関連物質においてもX線非弾性散乱実験が行われ、これまで分かっていなかったフォノン異常に関する新たな事実が次々と発見されている。

このような研究の動向は、ちょうど中性子散乱が当初、弾性散乱に限られていたがある時点から非弾性散乱にその研究手法が移っていったことと比較されるかもしれない。中性子弾性散乱が今でも重要であるのと同じく、X線弾性散乱の重要性は今後も変わらないだろうが、将来、X線非弾性散乱の占める重要性は、急速に増していくことは間違いないだろう。

### 2. 表面磁気構造の研究

**X 線磁気ブラッグ散乱**は、バルクの系に対してはよく研究が行われるようになった。しかし、その散乱強度は、通常の電荷散乱（トムソン散乱）と比較して5桁から6桁以下（酸化物などの化合物では7桁から8桁以下）のものであるため、その測定は容易ではない。ここで提案するものは、**表面磁気構造**を X 線磁気散乱により研究しようとするものであり、さらに困難な実験である。すでに、中性子回折を利用して、表面磁気構造の研究はさかんに行われているが、全反射を利用して、中性子の透過力のため、表面だけからの情報を取り出すことは難しい。一方、X 線による全反射を利用した手法では、中性子に比べ表面敏感な情報を取り出すことができる。もし、ERL からの X 線強度が十分にあるならば、X 線磁気散乱による表面磁気構造の決定も夢ではなくなるだろう。このような手法が適用可能になれば、表面研究にとって大きな一歩となるだろう。

対象とする系は、バルク物質の表面層だけでなく、いろいろな基板の上に異種原子・分子を成長させた多くの系が考えられる。特に、**強相関効果が強く現れる固体表面の研究**は、これからも重要な研究領域であると考えられる。表面電子系の電荷・スピン・軌道状態とその相転移現象の観測は、極めて重要な研究課題となるだろう。面内に散乱ベクトルを向けた反射だけでなく、いわゆる表面状態を反映する**磁気散乱のトランケーションロッド**を測定することにより、表面磁気状態の研究を行うことができるのではないだろうか。ただし、その散乱強度は非常に弱いことが予想されるので、ERL からの大強度 X 線が期待される。

### 3. 内殻励起による物質創成

**新物質の合成や単結晶化**は、物性物理学の分野においては、非常に重要である。新しい物質系は、新しい物理を生み出す可能性が高いからである。最近では新しい物質系を求めて、放射光 X 線でその場観察を行いながら、高圧・高温下で合成するというようなことが、普通に行われるようになってきた。それによって、合成条件の正確な割り出しが行われ、温度・圧力相図の極狭い領域でしか安定に存在できないような系も、高温での安定条件からの急冷により、作成することが可能となった。ここでは、X 線はあくまでも系の状態をモニターする手段であった。しかし、ここで提案する内殻励起による物質創成においては、X 線は物質創成のために必要な励起状態を作り出すことに使われる。すなわち、**内殻励起状態を準安定な中間状態**として、この状態をとることによってのみ可能な新物質が合成できる可能性がある。このような、理論的な予測は古くから行われており、実験もいくつか報告されている。しかし、実験的には、決定的に内殻励起が原因になって合成された新物質というものは、未だ報告されていないのではないだろうか。その一つの原因は、放射光 X 線の強度が弱すぎるため、一度準安定な励起状態に系が上げられても、その状態から新しい準安定状態に移る前に、もとの基底状態に戻ってしまうからであると考えられる。入射光子数がある臨界値を超えるならば、このよう



な励起状態を経由して、通常では作り出すことの出来ない、新しい準安定状態に移行することができるかもしれない。現在のところ、このような方法による新物質開発の手順は全くわからないが、新物資が合成されているような兆候があれば、エネルギーや偏光を制御して、その合成条件を割り出すことはできるだろう。

PF 将来計画に関する要望

## 【コンプトン散乱グループ】

群大工 桜井浩

コンプトンユーザーグループは主に ARNE1A1 を利用している。最近では高分解能コンプトン散乱による Cu-Pd 不規則合金のフェルミ面ネスティングの観測、偏光反転法磁気コンプトン散乱を用いた補償点における(SmGd)Al<sub>2</sub> のスピン磁気モーメントの決定、X-eX 同時計測法による 3次元運動量密度を直接観測などの成果があった。AR 高度化後、全反射・斜入射磁気コンプトンプロファイル測定が試みられており、磁気ストレージメディア、ナノ構造物質にも対象が広がりつつある。コンプトンユーザーは高エネルギー、高フラックス、円偏光（磁気コンプトンプロファイルの場合）X 線必要としているため AR 高度化は重要な進展であった。

現在将来計画で提案されている ERL は、サブミクロンサイズビームの利用可能性など魅力的特性を備えている。そこで、当グループは可能ならば高エネルギー X 線（40keV 以上できれば 100keV 程度）利用を希望したい。もし実現すれば、現在進行中の研究課題を中心に以下のような新展開が期待される。

なお、高エネルギー X 線の発生に労力が必要であろうと予想されるが、入射エネルギーを 5 GeV とし、アンジュレーターの高次光を利用するなどの可能性を検討していただければ幸いである。

### サブミクロンビームの利用

#### 1. 40keV 程度が利用可能な場合

全反射、斜入射配置でのコンプトン散乱、磁気コンプトン散乱の可能性が開けてくる。従来、高エネルギー X 線の透過性のため、薄膜の測定が困難と考えられてきた。しかし、AR 高度化後、斜入射配置、全反射配置で鉄の磁気コンプトン散乱の測定を試みた結果、測定が可能であることがわかった。この測定では 100mm 程度の大きな試料が必要であったが、サブミクロンサイズかつ高輝度のビームを利用できれば、通常の成膜装置で基板上に成膜した磁気多層膜、クラスター、ナノ材料などへ応用が期待される。

#### 2. 100keV 程度が利用できる場合

X-eX 同時計測法の新展開が期待される。X-eX 同時計測法は電子の 3次元運動量密度を直接観測するユニークな測定法である。しかし、コンプトン散乱した反跳電子の電子分光を行うため、試料厚さを数十 nm 程度に薄くする必要がある、試料に制限があった。しかし、サブミクロンサイズのビームが利用できれば、電子顕微鏡の試料がそのまま利用できる。超格子多層膜、ドットの量子井戸状態が観測できるであろう。

その他、高圧コンプトン、顕微鏡的コンプトン（微細加工磁性ドット、多層膜など）が提案されている。

### **短パルスビーム（時分割測定）の利用**

時分割ダイナミクスへの展開が期待される。また、時分割を利用した深さ分解コンプトン散乱も提案されている。工学応用として、エンジンの燃焼ガスの化学状態を時分割で観測が提案されている

また、コンプトンと直接関係ないが、入射ビームの入射周波数と電子のラーマー歳差運動の周波数を同期させた一種の ESR 測定が提案されている

### 3. 可能性

1. ERL のオペレーションエネルギーを 5 GeV とする。
2. アンジュレーターの高次光を利用する。
3. その他、ミニポールアンジュレーターの利用などの可能性がある。

## 【固体分光 I グループ】

### 顕微二次元光電子分光による ナノ粒子 3次元バンドマッピング

奈良先端大 大門 寛 (教授)  
服部 賢 (助教授)  
武田 さくら (助手)  
松井 文彦 (助手)

本研究では、ナノ粒子の電子状態、特にフェルミ面のマッピングを3次元的に測定することを目的としている。光源が ERL からの 100eV 付近の軟 X 線を 50nm φ のスポットサイズにして試料に照射し、試料を動かすことによって顕微鏡像を得る。その中の見たい領域からの二次元光電子分光パターンを二次元表示型分析器で瞬間的に測定し、光エネルギーと電子の運動エネルギーをスキャンすることによって、バンド構造を3次元的にマッピングする。測定のイメージ図を図1に示す。微小領域の測定は、試料上でのスポットサイズが小さくなければ不可能であり、これまでマイクロオーダーが精一杯であり、ナノ粒子の測定はできていなかった。また、電子状態の3次元測定は時間がかかるためにこれまで進んでいなかったが、最近我々は二次元測定を繰り返すことによってフェルミ面の3次元的な測定に初めて成功した。ERL を利用すれば、これまでフェルミ面だけで数日かかっていた測定が、全てのエネルギーにおいて数分でできるようになることが期待できる。このような研究の発展により、これまで測定できなかったナノ粒子の電子状態が詳しく測定できるようになり、ナノ粒子を利用した量子デバイスの開発に貢献することが期待できる。

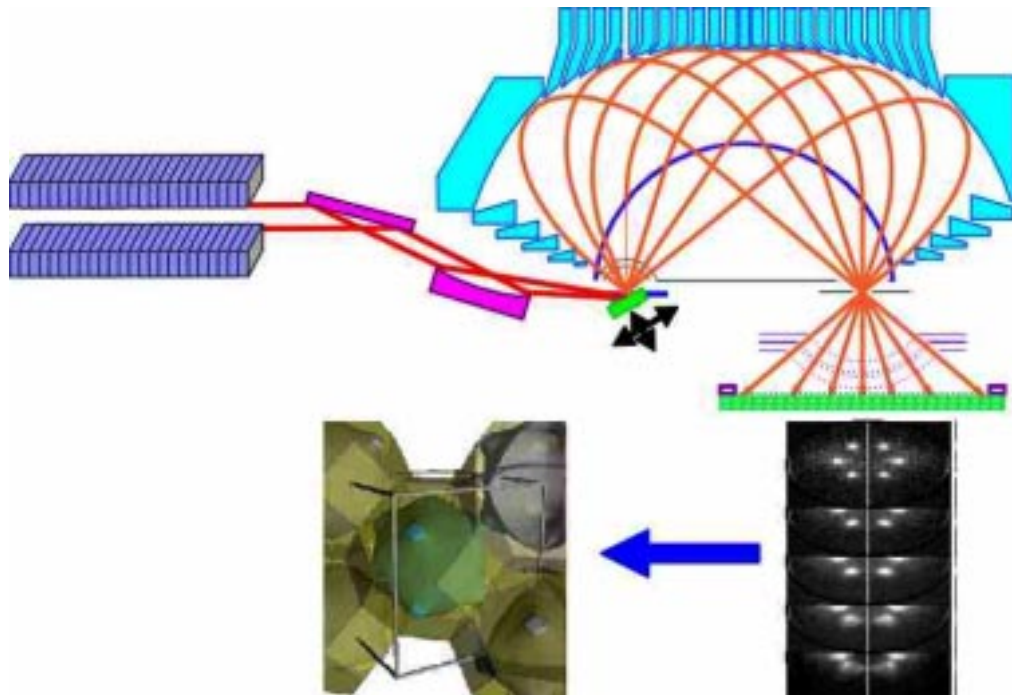


図1. 測定例のイメージ図

## 多光子光電子分光法

宮原恒あき（東京都立大）

多光子光電子分光とは、あるエネルギー  $h\nu$  の光子に対してあたかも  $n h\nu$  の光子が入射したとして電子エネルギー分析器をセットしておき、光電子を計数する測定法である。

### 1) 多光子光電子分光の成立条件

一般に回折光子分光器は高次光を含む。高次光による光電子は多光子光電子励起と区別がつかない。現在の技術では、高次光はフィルターや準周期回折格子を用いて  $10^{-4}$  程度まで低減できる。したがって多光子励起が1光子励起の  $10^{-4}$  程度より大きい確率で起こるならこの測定は可能である。しかし以下に述べるように、変調法などの工夫をすることでこれよりもはるかに小さい確率の場合も測定できる可能性がある。もちろん自由電子レーザーが完成すればこの確率が著しく大きい事は分かっているが、逆に短時間に光電子が高い空間密度で放射されるためにエネルギー分解能が著しく低下する。

ERLからの放射光でこれを実現するには、試料上でスポットサイズを  $1\ \mu\text{m}$  以下に収束する必要がある。電場の  $rms$  は

$$\langle E \rangle = (2 n_p h \nu / (\epsilon_0 V))^{1/2}$$

で与えられる。ここで  $n_p$  は体積  $V$  中の光子数である。ERLのメリットはエミッタンスが小さいばかりでなくバンチ長が短いので  $V$  を小さくできる点である。設計上のパラメータを参考にすると、1ピコ秒のバンチ長に対しては  $1\ \mu\text{m}$  にビームを収束させたとき、 $100\ \text{eV}$  の光子エネルギー（バンド幅  $0.1\%$ ）にたいして

$$\langle E \rangle = 10\ \text{mV} / \text{nm}$$

程度になると予想される。もし双極子長（双極子モーメントを  $e$  で割った値）が  $1\ \text{nm}$  もあれば、非線形効果によるエネルギーシフトが  $10\ \text{meV}$  生じたのと同様の効果を持つ。

（電場と双極子モーメントの積が小さいとして、光子エネルギーにたいしてこの積のエネルギーを無視するのが線形近似である）これはたとえば  $100\ \text{eV}$  の入射光の  $10^{-4}$  であるから、1光子過程にくらべてその程度の確率で2光子励起が起きる。しかし  $1\ \text{nm}$  の双極子長は価電子状態でも（ $10\ \text{eV}$  程度以下の光子エネルギーの場合を別にすれば）通常は大きすぎる値であり内殻状態では通常これより1桁ないし2桁小さい場合が多い。この場合、この小さい信号を抽出するには、2光子過程の信号強度が  $n_p^2$  に比例する事を利用する。

すなわちたとえば2光子光電子分光では、入射ビームを2つに分割してそれらを試料上で離したり重ねたりしながら変調し、（1光子過程では起こり得ない）入射光強度依存性を抽出する変調法が有力であると予想される。このとき、試料上の場所依存性を消去するために一方のビームの結像点を周波数  $f$  で変調しもう一方のビームの結像点を周波数  $2f$  で変調してロックイン・アンプで  $f$  成分を抽出する。これによりさらに5桁ほど小さい2光子効果を検出することができるから、全体として1光子効果と比べて  $10^{-9}$  程度の小さ

い効果を抽出することができると期待される。

## 2) 多光子分光で何がわかるか。

1光子励起が  $\mathbf{r}$  の1次のモーメントを見ているのに対して、 $n$ 光子励起では  $\mathbf{r}$  の  $n$  次のモーメント (近似的に、2光子では4重極モーメント、3光子では8重極モーメント) を見ていることに対応する。これは多光子過程が一般に構造因子を  $\mathbf{r}$  のべきに展開した形を含むからである。終状態を一定に選べば  $n$  光子の光電子スペクトルはそれぞれ異なるはずであり、始状態 (価電子状態) の空間的広がりを  $\mathbf{r}$  の高次のモーメントを通じて定量的に表現することができる。

いうまでもなく物性物理学において価電子帯の電子状態の局在性・遍歴性を定量的に記述する事は極めて重要である。たとえば1次元のコサインバンドは隣接サイト間の飛び移りエネルギー  $T$  を与えれば決まるが、逆に同一の  $T$  を与える波動関数は実は無限に存在するので確定できない。電子相関が関係する現象の多くは、この波動関数の局在性・遍歴性と関連しているので、角度分解光電子分光法で得られるバンド構造はこの側面を見落とす事になる。したがって多光子光電子分光を用いてこれを定量的に評価できれば、エネルギー状態密度やバンド分散の情報ばかりでなく電子の空間分布に関する情報も同時に得られるという点で、画期的な分光法になる。

## 3) ビームラインにたいする要請

2つまたは3つのビームに分割してそれらを再度合流する技術が必要である。このときピエゾ素子などを用いてそれらの位置を変調する。3つのビームの場合3光子光電子分光までの信号が抽出できる。それぞれのビームは試料上で  $1\ \mu\text{m}$  程度に収束されている事も必要条件である。これらの技術開発に要する年月は、すでに基礎となる光学技術が確立していることを考慮すると、ERLの実現に要する期間よりは短期であると期待される。

ただし、自由電子レーザーが完成した場合は、多光子過程は十分に大きい確率で起きるので、このような変調法なしに直接に多光子過程による光電子を検出すればよい。しかしエネルギー分解能が劣化する弱点は避けられないので、ERLはエネルギー分解能を重視するときには有利である。

## 【核共鳴散乱グループ】(ERLを用いた核共鳴散乱研究)

パルス幅の短さおよび、第3世代光源を上回るビーム輝度等を利用する事で、新しい核共鳴散乱研究が期待される。

### 1. 顕微メスバウアー分光法

高輝度および数 $\mu\text{m}$ 程度のビーム特性を用いる事で、サブミクロン領域の実用的な顕微メスバウアー分光法が可能になる。また、この方法を発展させて行く事でメスバウアーCT測定が可能になってくる。この方法は放射光核共鳴前方散乱を用いる事で、MRIやX線CTの場合のように固体および生体試料の3次元的な測定を行うものであるが、測定するものは内部磁場や電場勾配等の電子状態に関するものであり、内部磁場や電場勾配の強度や方向の分布に関する3次元的な測定が可能になるというこれまでにはない新しい測定手法になるものと考えられる。これ以外にも、超高压下での測定や微小試料の測定においても優位性を発揮する事が可能であると思われる。

### 2. 超短寿命核種の核共鳴励起

パルス幅を最小で100 fsec程度にまで短くできることより、これまでに測定が不可能であった励起状態の寿命の短い核種による核共鳴散乱測定が可能になるものと考えられる。このように測定核種が増加する事により、放射光核共鳴散乱法の重要な特徴である元素選択性を最大限に活かした電子状態に関する研究および非弾性・準弾性散乱に関する研究が可能になる。これにより、物質・生命科学研究およびNEETに代表されるような原子核科学研究が大いに発展していくものと考えられる。しかしながら、現時点ではこれまでに使用されている検出器の時間分解能が100psec程度以上であるため、高速検出器の開発も併せて行っていく必要がある。

### 3. ポンププローブメスバウアー分光法の開発と光・マイクロ波誘起型磁気相転移の研究

電磁場(光)の印加により磁気相転移を起こす分子磁性体は、電磁場励起の直後に高速で生じる電子励起状態の変化や高スピン・低スピン状態間の緩和の発生などにより中心金属周辺の励起配位子場が時間的に変化することがある。このような材料中でおきる複雑な反応過渡過程を明らかにすることは、電磁場励起型の磁気相転移現象を利用する新機能材料を実現する上で極めて重要な研究課題となっている。RI線源を利用したメスバウアー分光を用いて電磁場誘起型磁気相転移の電子励起状態、反応中間体のスピン、電子状態の過渡過程を調べる場合、RI線源が崩壊寿命を持つため原理的に入射ビームのパルス特性に制限が生じる。例えば、 $^{57}\text{Co}$ 線源の14.4KeVの $\gamma$ 線を利用する場合には、時間分解能を100nsec以下にすることは不可能となる。一方、ERL放射光源を利用するメスバウアー分光の場合、入射X線が周期的で鋭いパルス幅を持つため励起用パルス電磁場と正確な同期を取ること

が可能となり、1nsec オーダーの時間分解能を持つポンププローブメスバウアー分光測定が可能になる。本手法を用いることで、以下のような光、マイクロ波誘起型磁気相転移の研究が実現する。

① スピントスオーバー錯体の光誘起磁気相転移の励起配位子場緩和過程の研究

[Fe(ptz)<sub>6</sub>](BF<sub>4</sub>)<sub>2</sub> 等の数種類のスピントスオーバー錯体では、低温で光誘起低スピン・高スピン（磁気）相転移が生じることが報告されている。これは、光照射により、低スピン状態の基底状態から励起状態に遷移した電子が、基底状態に緩和する過程で、無視できない確率で高スピン状態の最低準位にトラップされる現象であり、光記録材料としての応用の可能性が期待されるため、その配位子場緩和過程と電子状態のダイナミクスを解明することは非常に重要な課題になっている。ポンププローブメスバウアー分光法はこのような励起配位子場、電子状態の緩和過程を 1ns 以下の時間分解能で解析することを可能にする。

② UHF、マイクロ波磁場照射による酸化物磁性体単結晶の非線形磁気相転移の研究

酸化物磁性体単結晶にUHF、マイクロ波を照射すると、マグノン（スピン波）、フォノン（音響波）相互作用の大きい一部の酸化物磁性体単結晶に、マグノン、フォノンの非線形励起を生じることがある。非線形相互作用を利用したスピン波励起はパラメトリック励起と呼ばれており、シュールのスピン波不安定化や磁気モーメントの異常な変動(動的磁気相転移)、磁気カオス等の興味深い磁気現象を生じることが理論的に予想されている。ERL放射光のパルスX線と励起用UHF、マイクロ波を同期させてメスバウアー時間スペクトルを測定することで、このような非線形磁気現象の発現機構の研究が可能になる。

#### 4. X線光学等の基礎科学研究

ERLでは第3世代の放射光と比較して光子縮重度が桁違いにあがることが期待される。そのため、これまでではX線パラメトリック変換等一部の現象でしか観測されず、まだ報告も数例であるX線領域での非線形現象の観測、利用がより広範囲にわたって可能になると考えられる。また集光条件やエネルギー条件によっては電子励起状態、あるいは破壊状態が試料の大部分を占めることも予想される。そのような場合、電子状態や振動状態のドラスティックな変化が核共鳴散乱の時間発展にどのような影響を受けるかを調べることは基礎的な情報として興味深い。



## 【位相コントラストグループ】

### X線干渉計測

代表 百生 敦

現在まで、X線源の干渉性の不足から、マクロなスケールでのX線干渉を利用した位相計測手法は、ボンゼ・ハート型X線干渉計を用いるものが殆どである。それを用いた位相トモグラフィによる生体組織の無造影観察など、一応の成果により、X線の位相を計測することのメリットが垣間見えてきている。しかし、干渉性や輝度の不足により、ごく限られたアクティビディに留まっているとも言える。E R Lの次世代の光源が開発されれば、当該分野の発展がおおいに期待される。

E R Lが利用できれば、可干渉距離が長いX線が使い、輝度が高いことによって高速測定が可能となるゆえに、光学系に要求される安定性が緩和される。この特徴を生かし、様々な干渉光学系が発案され、構築されると考える。これによって、X線干渉光学の分野では、魅力的な展開が期待される。例えば、①干渉光学系を用いた超高分解能分光（フーリエ分光）、②スペックルの利用（X線スペックル干渉法）、③干渉顕微鏡、などが挙げられる。

①が成功すれば、X線分光に係る多くの実験に影響する。特に軟X線領域で、従来の分光器のエネルギー分解能をコンパクトな装置で凌駕する可能性があり、超光分解能SX-VUV分光学といった新領域の開拓を期待したい。

スペックル利用法としては、X線光子相関分光法（XPCS）の研究が進められており、乱れた系の原子スケールのダイナミクス観察に適用されている。他施設の光源計画でも、本手法の展開が謳われているようである。我々もこの手法を手がける必要があるが、加えて、②で挙げたX線スペックル干渉法としてプラスアルファを目指す。干渉系においてスペックルを複素振幅として観察し、XPCS だけでは得られない情報、例えばダイナミクスの三次元情報、の取得も狙う。

③に関しては、現在オーバーサンプリング法を用いる方法が脚光を浴びている。今後研究開発が精力的に推進されてゆくであろうナノ物質の研究手法として魅力的なものであり、本光源提案においてそれを可能とすることは不可欠である。

ただし、この手法は解析で逆空間を経る関係上、複雑な構造に対してうまく画像が再構成できるかが危惧される。すなわち、この手法が狙うスケールと、従来の顕微鏡で見るスケールの間を埋める領域を「観る」手法も別途開発する必要があるように思われる。良質のゾーンプレートを使った位相コントラストの顕微鏡が幾つか考えられ出しているが、E R Lの利用できれば、それらが発展すると期待する。

## 【X線反射率グループ】

### PF将来計画についての提案

X線反射率ユーザーグループは、2002年3月に発足したばかりの約40名からなる新しいグループで、PF懇談会傘下の他のグループに比べ、特に次のような特徴で際立っているのではないかと思います。

- (1) 放射光パワーユーザーのみならず、これから放射光利用を始めようとする人たちを包含しているグループ。
- (2) 基礎研究をなさっている大学の先生方だけでなく、応用開発研究や品質管理にX線の技術を活用している産業界の技術者の皆さんを巻き込んでいるグループ。
- (3) 薄膜解析やX線反射率を主目的とする専用の実験ステーションが現時点では整備されていないことから、PFの将来計画にはもちろんこと、現PF、現PF-A-Rの近未来計画にも格段に深い関心を寄せているグループ。
- (4) ナノテクノロジー等、これからのプロジェクトに積極的に取り組もうとしているグループ。

X線反射率ユーザーグループは、9月の応用物理学会において「X線中性子線反射率/散乱法による薄膜・多層膜の構造研究の新展開」シンポジウムを企画した折、ユーザーグループ会合を開催いたしました。その場でも将来計画に関する討論を行い、PFが、世界の趨勢に遅れをとることなく、低エミッタンス（超高輝度、高コヒーレンス）や短パルスの特徴とするERL光源の計画に本格的に着手されたことは大歓迎であり、実現にむけ、当グループとしてもできることをやってゆこうという意見が大勢をしめました。

このたびの松下先生からの呼びかけにこたえ、具体的な提案書をまとめたグループは、次に挙げる7研究グループにとどまりましたが、これは決して研究のプランがないということではありません。将来の研究計画を自らの研究組織の外にむけてオープンにするという、おそらくは放射光を含むビッグサイエンスでは当たり前になっているカルチャーに戸惑う人々が、当グループにはまだ多くいるという現実によるものでありましょう。次の類似した提案募集の機会には、さらに多くの提案をさせて頂きたいものと考えております。

よろしく願いいたします。

## 提案課題リスト

1. 電子デバイス用有機超薄膜の結晶状態とデバイス特性（九州大学 高原グループ）
2. 磁気デバイスにおける磁気結合効果の界面作用、時間応答性（日立 平野グループ）
3. 強い拘束を受けた合金薄膜中の相転移ダイナミクスとその応用（京都大学 奥田グループ）
4. 金属および金属酸化物ナノ粒子の分散構造と電子伝達系の機能（物質・材料研究機構 材料研究所 桜井グループ）
5. 薄膜/シリコン基板界面および絶縁膜中に埋め込まれたシリコン量子ドットの構造と電子物性との相関ならびに物性制御技術開発（福岡大学 香野グループ）
6. 有機デバイス創製のための界面ナノ構造のX線散乱その場観察技術の確立（産総研 吉田グループ）
7. 水面高分子単分子膜のナノ構造（京都大学 松岡グループ）

## 1. 研究課題

電子デバイス用有機超薄膜の結晶状態とデバイス特性

## 2. 研究代表者、参加者一覧

高原 淳、九州大学有機化学基礎研究センター

森田 正道、九州大学有機化学基礎研究センター

佐々木 園、九州大学大学院工学研究院

田中 敬二、九州大学大学院工学研究院

## 3. 研究概要

フレキシブル・エレクトロニクスの実現のために、ペンタセン分子はいろいろな種類の基板の上に蒸着されてきた。この数年間には、ペンタセンの高品質の単結晶を使って、トランジスタなどの最高品質のデバイスが製造できることが確認され、最近では蒸着膜でも基板の表面特性の制御により高品質の薄膜が得られることが明らかにされている。しかしながらその機構については明らかにされていない。本研究では表面エネルギーを精密に制御した有機シラン単分子膜上にペンタセン薄膜を形成し、結晶の寸法、結晶の完全性、膜厚方向の電子密度分布などを XR,GIXD により評価し、次世代の高性能電子デバイス構築のための基礎的な知見を得ることを目的とする。代表者らはすでに有機シラン単分子膜の XR 測定を行い、凝集状態と表面力学物性あるいは濡れ特性の関連を明らかにしており、表面エネルギーの制御法も確立している。

## 4. 新光源の利用により期待される主要な進歩のポイント

SR 光を用いた XR,GIXD 測定により

1) 基板の表面自由エネルギー、化学構造とペンタセンの結晶状態の関係の解明

2) 結晶化過程での構造変化のその場測定

が可能となる。これらの情報を製膜過程にフィードバックし、高性能の電子デバイス構築のための基礎的な知見を集積する。

## 5. 内外の類似施設等に対する競争力、または波及効果等について。

有機薄膜の製膜装置を組み込んだ施設は設置されていない。有機 FET は次世代のデバイスであり産業界への波及効果は計り知れない。

## 6. 実行に向けた抱負、具体的な行動プラン、ビームライン・機器整備等についての要望・留意点等、特記事項

有機超薄膜の製膜過程が評価できるように有機分子蒸着システムを附属させる。

## 7. 研究課題説明図

添付 (図 1)

## P F 将来計画に関する研究提案

### 1.研究課題名

磁気デバイスにおける磁気結合効果の界面作用、時間応答性

### 2.研究代表者、参加者一覧

平野辰己

### 3.研究概要

課題：磁気ディスクの再生ヘッド、媒体では、反強磁性／強磁性の交換結合、非磁性層を介した反強磁性結合、媒体磁界による再生ヘッド軟磁性層の磁化回転機構などを利用している。次世代の高密度化、高速応答化には、これら磁気結合の界面での作用や高速時間応答性を明らかにする必要がある。さらに、デバイス化時の不良原因の解明も今後重要となる。

手法：1)磁気円二色性 X 線反射率による選択磁性元素の磁気モーメント計測と相関  
(膜構成、膜厚、界面凹凸、磁気抵抗効果など)

2)磁気円二色性散漫散乱による磁気結合評価と相関

3)X線位相差検出による磁化分布計測と磁気特性との相関

4)X線パルス同期による磁化回転の高速応答性評価や周辺磁性膜との相関評価

5)マイクロビームを用いた局所磁気結合交換の評価および、磁気デバイスの上記項目評価による不良原因の解明

### 4.新光源の利用により期待される主要な進歩のポイント（数行で）

1)偏光制御時の X 線強度の増大

2)コヒーレンス向上による位相差検出精度の向上、

3)偏光制御とパルス制御の同期

### 5.内外の類似施設等に対する競争力、または波及効果等について（もしあれば、数行で）

6.実行に向けた抱負、具体的な行動プラン、ビームライン・機器整備等についての要望・留意点等、特記事項（もしあれば、1、2行）

1)極性切替えの円偏光、直線偏光の光源とパルス同期。

2)遷移金属の L 端波長での反射率、散漫散乱、位相などの検出機構。

3)パルス同期の高速計測機構

## P F 将来計画に関する研究提案

### 1.研究課題名

強い拘束を受けた合金薄膜中の相転移ダイナミクスとその応用

### 2.研究代表者

奥田浩司

### 3.研究概要

研究対象：金属およびその酸化物合金極薄膜の組織変化のダイナミクス

研究手法：鏡面反射率と  $q_y$ - $q_z$  2次元散漫散乱の同時測定による平均構造と拡散による組織形成の定量評価、およびそのダイナミクスの解明。鏡面反射率解析と反射小角散乱の同時定量測定により、擬2次元系での組織形成過程のダイナミクスの特徴を明らかにする。小角散乱においては2次元特有の構造形成過程、組織安定性を解明するためにデコーヒーレント化された通常の小角と、スペックルパターン解析による拘束下のナノ構造特有の相関構造を調べ、ナノ組織制御プロセスへの応用を図る。

金属系の薄膜の自己組織化については現在まだ強い2次元性に特有の組織形成過程が定量解析の対象とされるところまで達していないが、これらの理解、組織設計には現在の手法の組み合わせ的発展である上述の反射率・2次元散漫散乱同時測定を実現する必要がある。また、ナノスケールの相転移ダイナミクスを解明する上では新光源のコヒーレントな性質を同時に利用して時間相関による情報量をサブマイクロビームによって実現することが重要である。

### 4.新光源の利用により期待される主要な進歩のポイント（数行で）

新光源を利用するメリットとして期待しているのは

- 1) サブマイクロビームの実現
- 2) 偏光制御性
- 3) X線源に付随したトリガー供給による超高速時間分解の可能性  
(中性子のキッカーパルスに相当する信号のユーザへの供給)

### 5.内外の類似施設等に対する競争力、または波及効果等について（もしあれば、数行で）

### 6.実行に向けた抱負、具体的な行動プラン、ビームライン・機器整備等についての要望・留意点等、特記事項（もしあれば、1、2行）

1. BL に対する要望 円偏光発生(極性逆転可)が可能であること。光学ハッチに装置持込の可能性を残すか（例えば FZP など）、あるいは実験ハッチを十分長く（10m程度）とること。
2. 機器整備に関する要望 : Diffuse 用の高速2次元検出器。 CCD、将来的には2次元高速マルチワイヤまたはマイクロストリップチャンバなど。

## P F 将来計画に関する研究提案

### 1.研究課題名

超薄膜中金属・金属酸化物ナノ粒子の分散構造と電子伝達系の機能

### 2.研究代表者

桜井 健次 物質・材料研究機構 材料研究所 高輝度光解析グループ

(当研究室だけでなく、できるだけ多くの機関、特に民間企業の研究者を巻き込み、基礎研究と実用的な研究のどちらにも貢献できる体制を望みたい)

### 3.研究概要

金属・金属酸化物ナノ粒子は、固体に見られない新規な物性を発現するほか、その表面積の大きさからさまざまなタイプの触媒として利用される。本研究では、X線反射率法により、微弱な電磁波を検知して起電力を生じさせるのに有効な電子伝達系を実現するためのナノ粒子の材料学的な分散構造を決定する。

### 4.新光源の利用により期待される主要な進歩のポイント (数行で)

コヒーレント散乱に着目したモデルフリー構造決定

試料によっては光相関分光による構造ダイナミクスへの展開も期待したい

### 5.内外の類似施設等に対する競争力、または波及効果等について (もしあれば、数行で)

本テーマで扱う特定の金属・金属酸化物ナノ粒子だけでなく、多くのナノ材料への応用展開が期待される。

### 6.実行に向けた抱負、具体的な行動プラン、ビームライン・機器整備等についての要望・留意点等、特記事項 (もしあれば、1、2行)

従来のX線反射率法を拡張し、高精度のゴニオメータと小角カメラ的なシステムを備えた測定システムと新しい解析ソフトウェアを開発することが必要である。なるべく早期に独自の取り組みを開始したい。

### 7.研究課題説明図 (1～6の内容をパワーポイントのスライドで1枚で)

別添 (図2)

## P F 将来計画に関する研究提案

### 1.研究課題名

薄膜/シリコン基板界面および絶縁膜中に埋め込まれたシリコン量子ドットの構造と電子物性との相関ならびに物性制御技術開発

### 2.研究代表者、参加者一覧

香野 淳、その他（シリコンナノクリスタル研究の共同研究者への参加を呼びかける予定）

### 3.研究概要

MOS型デバイスの高性能化および高機能化において、絶縁膜とシリコン基板との界面物性を精密制御することが益々重要となっている。また、新しい機能を有するデバイスの開発において、シリコンナノ構造の物性解明と制御技術の確立が重要となっている。埋め込まれた界面やナノ構造を非破壊で測定・解析する技術、その場観察技術の開発は、プロセス技術開発において重要である。

本研究では、トランジスタ型の強誘電体メモリデバイスの開発を目指して、強誘電体薄膜および薄膜/シリコン基板界面の構造を明らかにすると共に、薄膜形成や熱処理プロセス過程におけるそれらの変化を調べ、電子状態やデバイスの電気特性との関係を明らかにすることにより、界面物性の制御技術の開発を行う。また、シリコン量子ドットを用いた多値メモリの実現を目指して、絶縁膜中に埋め込まれたシリコン量子ドットの構造（ドット中の格子歪、ドットサイズ分布）の非破壊解析技術の開発を行う。ドット中の格子歪、サイズ分布は量子効果やクーロンブロッケイド効果と直接関係するため、それらを定量的に解析し、制御する技術の確立が重要である。

非破壊で埋め込まれた界面構造やナノ構造を測定するためには、斜入射X線回折、X線反射率解析、散漫散乱の技術が有効である。さらに、物性制御およびプロセス技術開発の観点から、プロセス中のそれらの変化をその場観察する技術の確立が重要と考えられる。

### 4.新光源の利用により期待される主要な進歩のポイント（数行で）

- (1) 微小径(50nm?)ビームを用いたサブミクロン領域の測定、および面内分布測定。
- (2) 時間分解測定

### 5.内外の類似施設等に対する競争力、または波及効果等について（もしあれば、数行で）

### 6.実行に向けた抱負、具体的な行動プラン、ビームライン・機器整備等についての要望・留意点等、特記事項（もしあれば、1、2行）

希望：

測定系に隣接してクリーンブースやドラフトなどがあり、基板洗浄などの前処理が容易にできる。

### 7.研究課題説明図（1～6の内容をパワーポイントのスライドで1枚で）

別添（図3）



## P F 将来計画に関する研究提案 (2002.9.20)

### 1. 研究課題名

有機デバイス創製のための界面ナノ構造のX線散乱その場観察技術の確立

### 2. 研究代表者、参加者一覧

吉田郵司 (研究代表者、産業技術総合研究所光技術研究部門 主任研究員)  
谷垣宣孝 (同上 グループリーダー)  
永松秀一 (同上 ポスドク)  
近松真之 (同上 ポスドク)  
吉本則之 (岩手大学工学部材料物性工学科 助教授)  
石田謙司 (京都大学工学研究科電子物性工学専攻 講師)  
籠恵太郎 (京都大学ベンチャービジネスラボラトリー ポスドク)  
八尋正幸 (同上 ポスドク)  
久保野敦史 (京都工繊大繊維学部 講師)  
金子文俊 (大阪大学理学部 助教授)

### 3. 研究概要

有機デバイスは、軽量、フレキシブルかつ低負荷環境性に優れる為、次世代のモバイル技術への応用が期待され、有機ELや有機トランジスタ等の研究開発が現在盛んに進められている。これらの有機デバイスの実現において、電極-有機層および有機層-有機層の積層界面のナノ構造がデバイス特性へ及ぼす影響が極めて大きく、その相関を調べることが重要である。本研究では、有機層の単分子層レベルからの形成機構を明らかにし高機能化への指針を得る基礎研究から、実際に積層された有機デバイスの有機ヘテロ界面の微細構造の評価とデバイス特性の相関を調べる応用研究まで行うことを目的とする。その為に、「埋もれた界面」を評価対象とする斜入射X線回折、X線反射率、散漫散乱を含む最先端のX線散乱技術を用いる。特に、ガス雰囲気制御中や超高真空中の有機分子線蒸着(OMBD)プロセス中でのその場観察を行う事が必要である。また、測定の高速度を図る為にイメージングプレートにより回折および散乱を動的計測する。更に、種々のダイナミクス計測に適した白色(連続)X線を用いるエネルギー分散型の測定技術の導入も光学系を含めて検討する。

### 4. 新光源の利用により期待される主要な進歩のポイント (数行で)

高輝度かつ高品質の放射光源を利用することで、回折等の信号の極めて弱い単分子層などの構造測定および定量的な評価が可能となる。また、測定時間の短縮のより高速化も図られ、OMBDにおける有機層の形成初期からその場観察が可能となる。

### 5. 内外の類似施設等に対する競争力、または波及効果等について (もしあれば、数行で)

6. 実行に向けた抱負、具体的な行動プラン、ビームライン・機器整備等についての要望・留意点等、特記事項

現在、同じ分野でユーザーを募り、「有機固体薄膜チーム」として実験計画のプラン作りに入っている。また、出来れば使用するビームラインの固定（出来れば専用ラインの設置）と、雰囲気制御および「その場観察」を可能にするゴニオメータへ着脱可能な専用O-MBDチャンバーを整備する必要がある。

7. 研究課題説明図 （1～6の内容をパワーポイントのスライドで1枚で）  
別添（図4）

## P F 将来計画に関する研究提案

### 1.研究課題名

水面高分子単分子膜のナノ構造

### 2.研究代表者、参加者一覧

京都大学工学研究科 松岡 秀樹

3.研究概要（わかりやすくお願いします。10行以内で、何の研究をするのか、つまり、何の分野のどういう試料を想定して、どういう原理・方法、装置で、どんな種類の信号・情報を得ようとするもので、それどんな目的にかなっていて、どういう意義があるのか..を書いてください。

気液、固液、液液界面などにおける両親媒性高分子の界面組織体形成は、材料学的（表面改質など）、生化学的（細胞・皮膚表面など）、環境学的（物質回収、洗浄など）見地、および食品化学（エマルジョン）や化粧品など実用的見地からも極めて重要である。界面活性物質を一般の低分子から高分子にすることで、親水部・疎水部の分子設計の幅が大きく広がり、多様な形態・モルフォロジーおよび機能の発現が期待される。

現在、重点的に検討を進めている、イオン性両親媒性ジブロックコポリマーが水面上で形成する単分子膜のナノ構造を水面に浮いたままX線反射率測定を行ったところ意外なナノ構造を有していることが判明した。水面上の疎水相の直下には、親水鎖が「絨毯」状に敷き詰められており、その下に「高分子ブラシ」が長く伸びているのである。

このような水面上での *in situ* ナノ構造解析には、反射率測定が唯一の手段であり、放射光光源により、ダイナミックレンジ10桁以上、 $q_{max} \sim 1 \text{ \AA}^{-1}$  が達成できれば、「絨毯」のより詳細な構造や「ブラシ」部分の *density profile* が正確に把握できるようになるであろう。

このような水面単分子膜のナノ構造の発現には、疎水性相互作用はもちろん、イオン基の解離度、高分子鎖のパッキングなど多様な因子が絡んでいると考えられ、それらの同時測定が望ましい。さらに表面動的散乱など動的測定によるダイナミクス研究も今後の新しいサイエンスである。よって、別図に示す「水面単分子膜複合測定システム」を提案する。

中性子の世界では、2000年にKENSに水平型反射率計ARISAが設置され、平成14年度より共同利用が開始される。ARISAはLBトラフを備えており、水面測定が可能である。放射光X線による反射率と中性子反射率の相補的利用により、高分子界面化学の分野は飛躍的に進展するものと期待される。

### 4.新光源の利用により期待される主要な進歩のポイント（数行で）

#### (1) マイクロビームによる面内走査反射率測定

反射率測定ではビームを浅く入射するため、照射面積が大きく平均情報となってしまうのが欠点の一つである。大強度を生かしたマイクロビーム反射率が可能と

なれば、面内走査測定が可能となりイメージング情報となると共に、特定領域内の選択的測定が可能となり、大きな飛躍に結びつく。

(2) コヒーレントX線を用いた動的X線反射率測定によるダイナミクス  
(Dynamic X-ray Reflectivity, DXR)

放射光によるコヒーレントなX線を用いるとレーザーによる動的光散乱と同様の動的測定が可能となり、時間相関関数が得られる。この原理はすでに小角散乱で行われ成果を挙げている。反射率でも同様に動的反射測定を行えば、従来入手困難であった界面のダイナミクス情報が得られると期待され、これは新しいサイエンス開拓に結びつく。

なお、すでに動的レーザー反射測定は実用化されているが、これがマイクロ秒およびマイクロメートルの次元を対称にしているのに対し、DXRでは、ナノメートル、ナノ秒の時空間スケールをカバーできる。相補的利用が望ましい。さらに附言すれば、中性子の将来計画に於いても、反射率とスピネコー技術を組み合わせた動的中性子反射の可能性が検討され始めている。

5.内外の類似施設等に対する競争力、または波及効果等について（もしあれば、数行で）

本邦には放射光を用いた反射率専用ビームラインは存在せず、ましてや水面、液面系に適用可能な試料水平型はなく、実験室系でも当研究室のみである。一方、諸外国、欧米では、放射光による反射率、GIXD測定は、すでに「特殊な測定」の域を脱しており、むしろ必須の測定情報となっている。実際、GIXDデータが無いために論文がrejectされた例も報告されているほどである。これは本邦における該当分野の発展を大きく妨げるものであり、少しでも早い設置が臨まれる。

一方、KENSにおいては、PORE, ARISAと言う2台の反射率計が設置され稼働している。ARISAは水平型であり、水面系のデータが集積され始めている。X線と中性子は、それぞれの特長を生かして相補的に用いるものであり、KEK物構研内部に於いても、放射光と中性子の研究部門間の意志疎通および意見交換を活発にさせていただいて、放射光反射率の非常に遅れた現状を打開すると共に、ユーザーの便宜を測っていただきたい。

6.実行に向けた抱負、具体的な行動プラン、ビームライン・機器整備等についての要望・留意点等、特記事項（もしあれば、1、2行）

平野さんが先日言われていた空いている4本を狙っていったら如何ですか？

7.研究課題説明図（1～6の内容をパワーポイントのスライドで1枚で）  
別添（図5）

電子デバイス用有機超薄膜の結晶状態とデバイス特性 (九州大学 高原グループ)

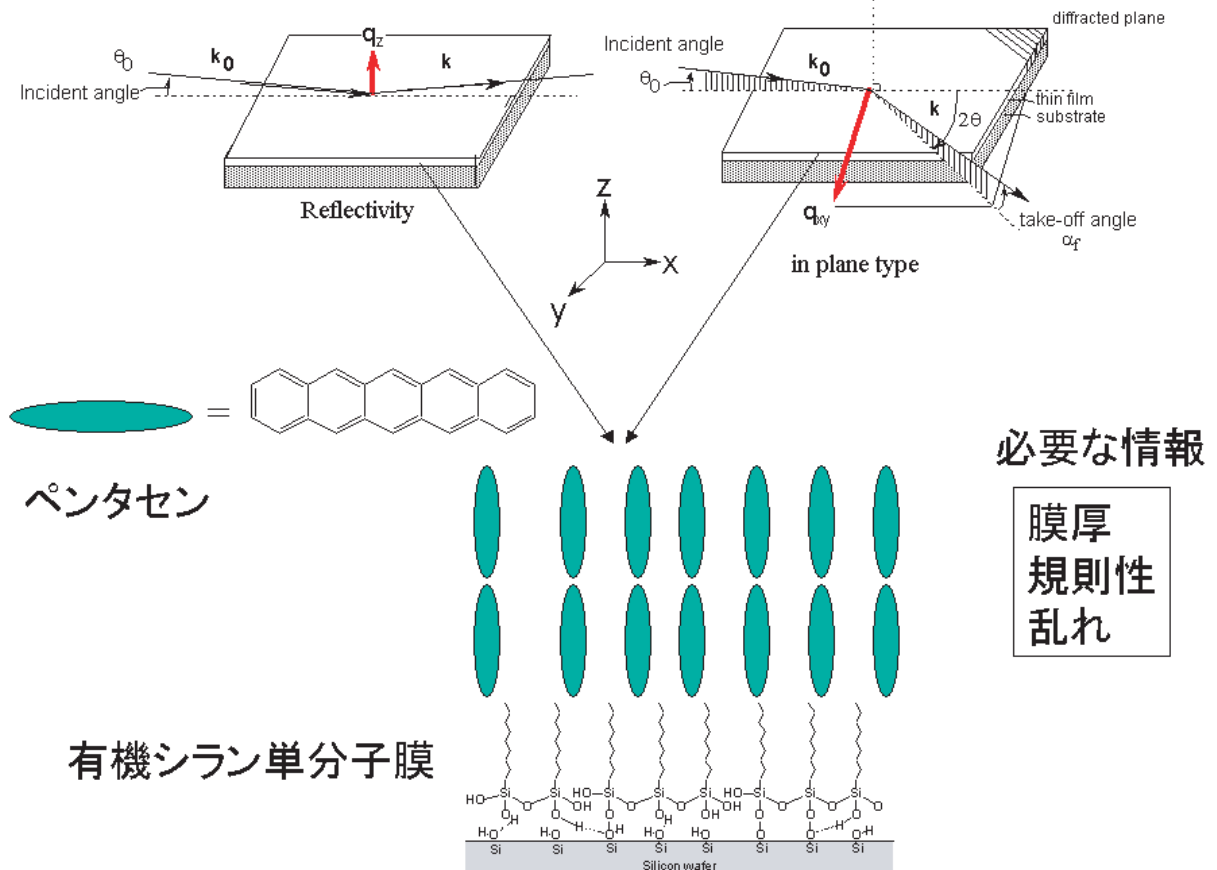


図 1

超薄膜中金属・金属酸化物ナノ粒子の分散構造と電子伝達系の機能

(物質・材料研究機構 桜井グループ)

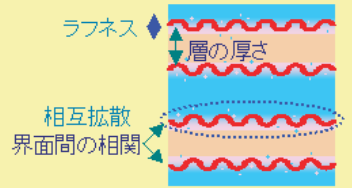
X線反射率法

1. 埋もれた界面を非破壊に計測できる唯一の計測技術
2. ナノ構造の分布情報を広い面積(mm~cm)にわたってすぐれた統計精度で収集  
(「木を見て森を見ない」危険を解消)

拡張された新しいX線反射率法

超薄膜の層構造の情報

鏡面反射  $\theta_i = \theta_r$



散漫散乱  $\theta_i \neq \theta_r$

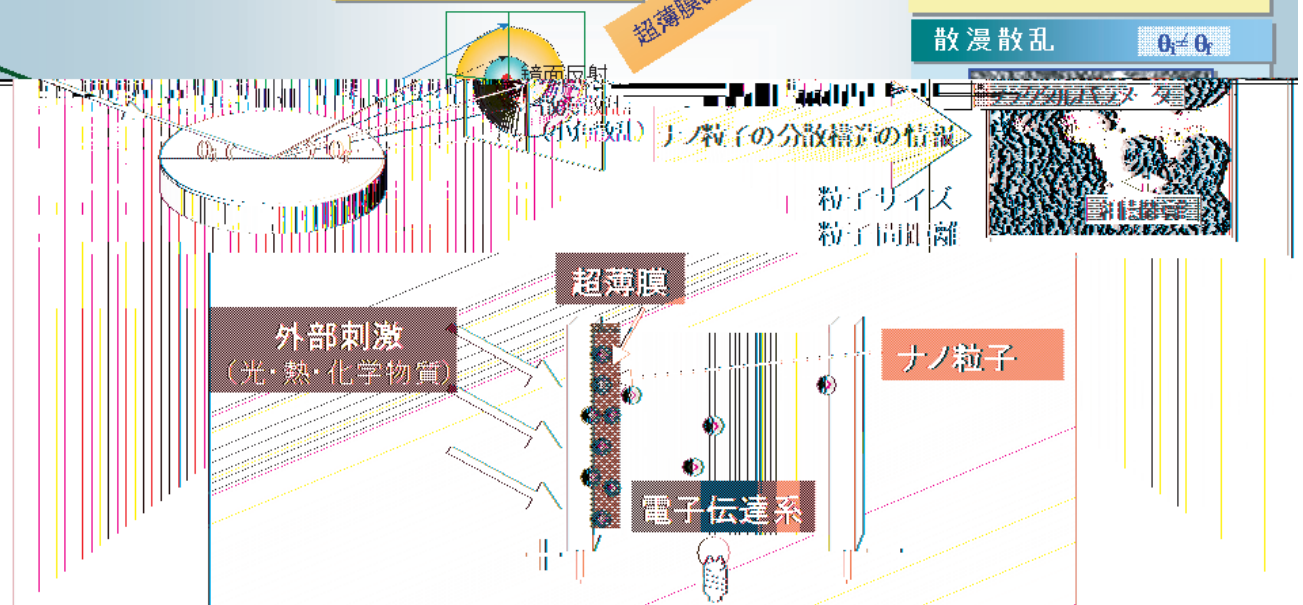


図 2

薄膜/シリコン基板界面および絶縁膜中に埋め込まれたシリコン量子ドットの構造

福岡大学 香野グループ

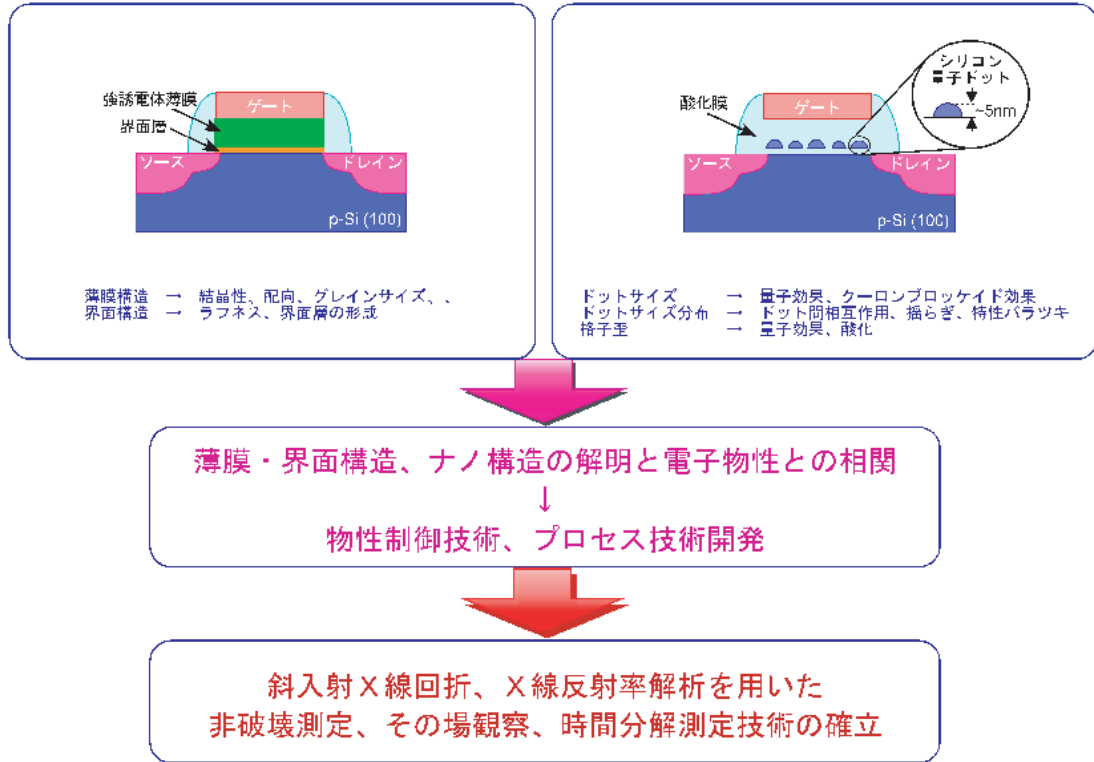
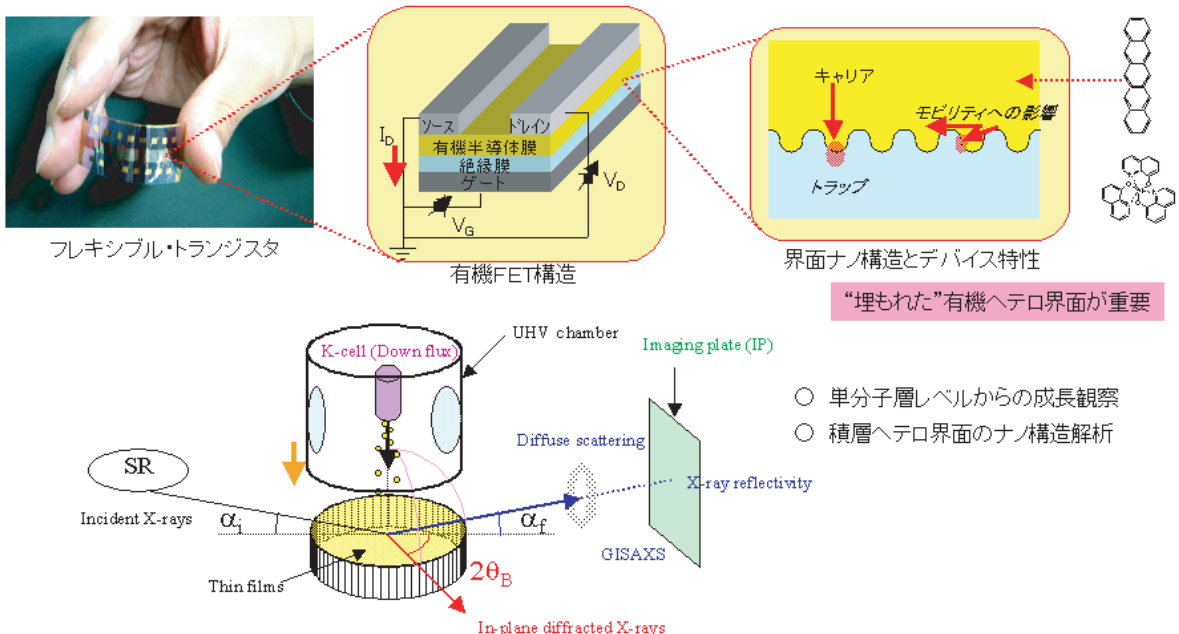


図 3

有機デバイス創製のための界面ナノ構造のX線散乱その場観察技術の確立

(産総研 吉田グループ)

研究目的: 有機デバイス(有機EL、フレキシブル・トランジスタ、他)の埋もれた界面のその場観察  
 研究対象: 有機固体薄膜(有機EL材料、有機半導体、他)の界面ナノ構造



“埋もれた”有機ヘテロ界面が重要

- 単分子層レベルからの成長観察
- 積層ヘテロ界面のナノ構造解析

図 4

# 水面高分子単分子膜のナノ構造 (京都大学 松岡グループ)

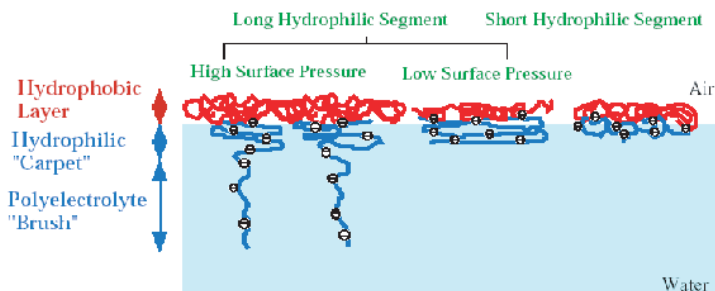


図2 図1のXRデータより求められる水面高分子単分子膜のナノ構造。水面上の疎水相、その直下の親水性「絨毯」構造、そして水中に長く伸びた「ブラシ」構造からなっており、この構造は、高分子鎖長や表面圧、pHなどに大きく依存する。

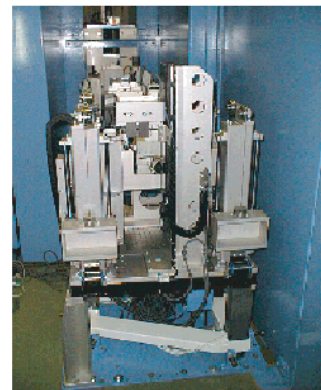


図4 試料水平型中性子反射率装置 ARISA

LBトラフを備えており水面単分子膜のin situ測定が可能である。もちろん高分子表面、高分子/高分子界面の測定が出来ると共に、高分子/固体や固液界面にも応用できる。ARISAの装置は、日刊工業新聞、科学新聞、京都新聞などで報道され、さらに最新のナノテクノロジー関係の書籍でも取り上げら得ている。

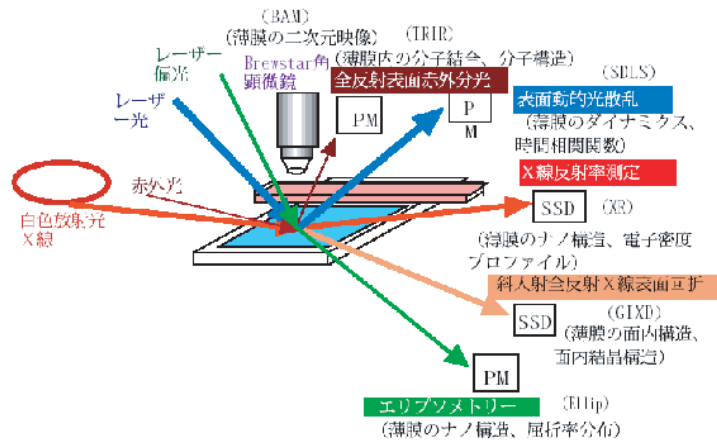


図3 我々が提案する水面単分子膜複合測定システムの概念図

図5

## Appendix II

### 【PF 将来計画に関する研究会 1】

「フェルムト秒パルス放射光源の開発と新しいサイエンスの展開」

提案代表者： 岩住俊明・間瀬一彦（KEK-PF）

会期：平成 14 年 10 月 3 日（木）、10 月 4 日（金）

会場：高エネルギー加速器研究機構

4 号館セミナーホール

主旨：現在 PF では、将来計画としてエネルギー回収型ライナック（Energy Recovery Linac, ERL）と蓄積リングを組み合わせた光源を検討しております。ERL では、

- 1) 100fs オーダーのパルス幅を持つ放射光が得られる、
- 2) 低エミッタンスを実現できるため輝度とコヒーレンスを上げられる、
- 3) 丸い小さな電子ビームが得られるため、縮小光学系を用いることによって 50nm $\phi$  のビームも期待できる、

などの従来の放射光源では不可能であった性能が期待できます。

新光源が実現すれば、光励起後の化学反応や構造変化などの超高速現象を内殻励起分光や X 線回折などの手法を用いて実時間測定する研究、コヒーレンスの良さやナノビームを利用した研究など、新しい放射光利用研究分野が拓けると期待されます。そこで、PF 将来計画に関する一連の PF 研究会を企画することにいたしました。

第 1 回目として本研究会では、X 線、軟 X 線、真空紫外領域での超短パルス光源の開発とその利用研究に焦点を絞り、この分野で活躍されている研究者の方々にお集まりいただき、最先端の研究を報告していただくことにいたしました。また、この研究会を通して、新光源開発や測定技術面における課題と解決の見通しを整理するとともに、さまざまな新しいサイエンスの可能性を検討し、より豊かな分野に育ててゆくための具体案を探究することを予定しております。

### 【プログラム】

10 月 3 日（木）

（1）PF の将来計画

13:30 「はじめに」 飯田厚夫（KEK・PF）

13:35 「PF の将来計画の概要」 野村昌治（KEK・PF）

14:15 「エネルギー回収型ライナック（ERL）の現状」 諏訪田剛（KEK・加速器施設）



14:55 「PFにおけるERLの検討(ラティス設計)」 小林幸則(KEK・PF)

休憩

16:00 「PFにおけるERLの挿入光源の特性」 山本 樹(KEK・PF)

(2) 短パルスX線を利用した研究

16:40 「X線放射光・短パルスレーザー光の同期特性と超高時間分解測定技術」  
田中義人(SPring-8)

17:20 「アバランシェ・フォトダイオードによる原子核励起現象の観測」 岸本  
俊二(KEK・PF)

18:00 「レーザープラズマ/逆コンプトン散乱X線の生命科学応用」 上坂 充  
(東大原子力施設)

18:50 懇親会

10月4日(金)

9:00 「非平衡協力現象の解明と物質開発に向けたフェムト秒パルス放射光源への期待」 腰原伸也(東工大理工)

9:40 「光誘起構造相転移の理論、一将来計画が実現したときどのようなサイエンスが期待できるか」 那須奎一郎(物構研)

休憩

10:50 「ピコ秒パルスX線の発生と時間分解型X線回折」 弘中陽一郎(東工大応用セラ研)

(3) 短パルス軟X線・真空紫外を利用した研究

11:30 「超短パルスXUV, 軟X線光源と固体分光」 渡部俊太郎(東大物性研)

昼食

13:10 「高輝度高次高調波の発生とその応用」 緑川克美(理研)

13:50 「放射光とレーザーの組み合わせによる固体表面研究と将来への試み」  
鎌田雅夫(佐賀大)、東 純平(京大院理)

14:30 「極紫外励起分子ダイナミクス of 現状と将来展望」 見附孝一郎(分子研)

15:10 「おわりに」 野村昌治(KEK・PF)

PF研究会1 参加者リスト (五十音順)

東 純平	京大理
安達 弘通	KEK-PF
阿部 洋	防衛大機能材料工
雨宮 慶幸	東大大学院新領域
飯田 厚夫	KEK-PF
伊藤 健二	KEK-PF
岩住 俊明	KEK-PF
岩野 薫	KEK-PF
上坂 充	東大原子力工学研
宇佐美徳子	KEK-PF
梅森 健成	KEK-PF
大久保 猛	東大原子力工学研
帯名 崇	KEK-PF
春日 俊夫	KEK-PF
加藤 茂樹	KEK加速器研究施設
鐘ヶ江幸男	東大原子力工学研
鎌田 雅夫	佐賀大シンクロトロン光応用研
河田 洋	KEK-PF
岸本 俊二	KEK-PF
木下 建一	放射線医学総合研
季村 峯生	山口大理工
久保田 瞳	東工大理工
腰原 伸也	東工大理工
小林 克己	KEK-PF
小林 正典	KEK-PF
小林 幸則	KEK-PF
近藤 建一	東工大応用セラ研
桜井 健次	物質・材料研究機構 材料研
桜井 浩	群大工
佐々木 聡	東工大応用セラ研
佐々木泰三	KEK
佐多 永吉	東大地球惑星
澤 博	KEK-PF
杉本 康伸	阪大基礎工
鈴木 章二	東北大理
諏訪田 剛	KEK加速器研究施設
高橋 敏男	東大物性研
高橋由美子	日大理工
武澤 康範	阪大基礎工
田中 章順	東北大理
田中 義人	理研
張 小威	KEK-PF
徳永 肇	筑波大
長野 みか	東工大応用セラ研
那須奎一郎	KEK-PF

野村 昌治	KEK-PF
羽島 良一	日本原子力研
畠山 昌録	(株)日立ハイテクノロジーズ
花川 和之	三菱電機(株)
原田健太郎	KEK-PF
平野 馨一	KEK-PF
弘中陽一郎	東工大応用セラ研
間瀬 一彦	KEK-PF
松下 正	KEK-PF
松原 雄二	住友重機械工業
松本 祐司	東工大フロンティア創造共同研究セ
水木純一郎	日本原子力研
三井 隆也	日本原子力研
三石 孟	宇都宮大工
見附孝一郎	分子研
緑川 克美	理研
宮島 司	KEK-PF
宮永 崇史	弘前大理
宮原 恒あき	東京都立大理
三好 憲雄	福井医科大第一病理
村木 聡	姫工大工
柳下 明	KEK-PF
山本 樹	KEK-PF
湯城 磨	(株)東芝
横山 利彦	分子研
若林 克三	阪大基礎工
渡部俊太郎	東大物性研

## 【PF 将来計画に関する研究会 2】

「X線位相利用計測における最近の展開」

提案代表者： 百生敦（東大・工）

会期：平成 14 年 10 月 31 日（木）、11 月 1 日（金）

会場：高エネルギー加速器研究機構

4 号館セミナーホール

主旨：X線の波動性は結晶によるブラッグ回折で古くから利用されていますが、マクロなスケールで波動性が見られることはあまりありませんでした。最近になって、シンクロトロン放射光源の高輝度・低エミッタンス化、X線光学素子および検出器の発展により、マクロなスケールにおいてX線の波動性が見えるようになってきております。これにより、1990年代半ばからX線位相利用計測の研究が活発化している状況があります。X線の位相には重要な情報が含まれているはずであり、多くの場面でこれまで捨てられてきた位相情報をうまく抽出しようとするこのような研究は、21世紀のX線利用分野に大きな影響を与えるであろうと期待されます。実際、X線位相光学や位相コントラストイメージングの分野において、多くの研究成果が報告されるようになっております。また、PFでは現在、エネルギー回収型ライナックを光源とする将来計画を検討していますが、このような次世代光源が実現できれば、この分野のさらなる発展が期待されます。

本研究会はこの分野の研究を推進している方々に集っていただき、最新の研究成果を前に議論・交流を深め、PFのみならず国内外における当該研究の更なる活性化に貢献することを目的とします。これまでにこのような切り口での研究会が行われたことがなく、皆様のご協力により実り多い研究会にしたいと考えておりますので、是非とも多くの方々のご参加をお願いいたします。

### 【プログラム】

10月31日（木）

08:30 受付開始

09:00 - 09:10 開会の挨拶（百生敦、東大・工）

09:10 - 09:40 「軟X線の1次および2次コヒーレンス測定で何が見えるか」 宮原恒あき（都立大・理）

09:40 - 10:10 「X線強度干渉法」 矢橋牧名（JASRI/SPring-8）

10:10 - 10:40 「強度相関を用いた干渉計測」 玉作賢治（理研・播磨）

10:40 - 10:55（休憩）

- 10:55 - 11:25 「X線干渉計のメトロロジーへの応用」 中山貫 (産総研・計測標準)
- 11:25 - 11:55 「多層膜冷中性子干渉計の新展開」 北口雅暁 (京大・理)
- 11:55 - 12:25 「冷中性子スピン干渉計とその物理」 日野正裕 (京大・原子炉)
- 12:25 - 13:30 (昼食)
- 13:45 - 14:15 「高空間分解能型X線干渉計の開発およびそれによる生体試料のマイクロ位相トモグラフィ」 小山一郎 (東大・工)
- 14:15 - 14:45 「分離型X線干渉計を用いた大視野位相コントラストX線撮像装置の開発 米山明男」 (日立・基礎研)
- 14:45 - 15:15 「X線干渉計を用いた生体イメージングの試み」 武田徹 (筑波大・臨床医学)
- 15:15 - 15:30 (休憩)
- 15:30 - 16:00 「X線干渉を利用した原子像の再構成」 高橋敏男 (東大・物性研)
- 16:00 - 16:30 「蛍光X線ホログラフィーの電子材料への応用」 林好一 (東北大・金研)
- 16:30 - 17:00 「光学的硬X線ホログラフィー顕微鏡の開発」 渡辺紀生 (筑波大・物理工学)
- 17:00 - 17:30 「オーバーサンプリング法を用いた単粒子X線回折」 西野吉則 (理研・播磨)
- 17:45 - 20:00 (懇親会)

11月1日 (金)

- 09:00 - 09:30 「ゼルニケ型硬X線位相差顕微鏡による透明試料の観察」 籠島靖 (姫工大・理)
- 09:30 - 10:00 「走査顕微鏡光学系を利用した位相計測」 高野秀和 (JASRI/SPring-8)
- 10:00 - 10:30 「Deterministic retrieval of surface waviness using X-ray phase-contrast imaging technique」 Alexei Souvorov (JASRI/SPring-8)
- 10:30 - 10:45 (休憩)
- 10:45 - 11:15 「整形外科・救急外科領域における屈折コントラスト画像法の適用」 森浩一 (茨城県立医療大)
- 11:15 - 11:45 「X線プリズムを用いたニ光束干渉計」 鈴木芳生 (JASRI/SPring-8)
- 11:45 - 12:15 「X線プリズムを用いたシェアリング干渉計による位相決定」 香村芳樹 (理研・播磨)
- 12:15 - 13:30 (昼食)
- 13:30 - 14:00 「X線暗視野法の開発の現状」 杉山弘 (KEK/PF)
- 14:00 - 14:30 「X線偏光イメージングの現状と偏光干渉イメージングへの展望」 沖津康平 (東大・工)

14:30 - 15:00 「次世代放射光光源と利用研究」 平野馨一 (KEK/PF)

15:00 - 総合討論「今後の展望とPF将来計画」、閉会

### PF研究会2 参加者リスト (五十音順)

浅利 桂一	神津精機 (株)
雨宮 慶幸	東大大学院新領域
飯田 厚夫	KEK-PF
上エ地 義徳	東大大学院新領域
上原 祥嗣	神津精機 (株)
大内 一生	松下寿電子工業 (株)
大隅 一政	KEK-PF
沖津 康平	東大工
籠島 靖	姫工大大学院理
河田 洋	KEK-PF
川本 真也	東大大学院工
北口 雅暁	京大大学院理
北島 義典	KEK-PF
郷原 一寿	北大大学院工
香村 芳樹	SPring-8/理研
小島 正道	神津精機 (株)
小山 一郎	東大工
桜井 健次	物質・材料研究機構
佐々木 聡	東工大応セラ研
篠原 佑也	東大工
島雄 大介	茨城県立医療大
下村 晋	慶應大理工
杉山 弘	KEK-PF
鈴木 芳生	(財)高輝度光科学研究センター
高野 秀和	JASRI/SPring-8
高橋 敏男	東大・物性研
武田 徹	筑波大臨床医学系
玉作 賢治	SPring-8/理研
張 小威	KEK-PF
中山 貫	産総研
西野 吉則	SPring-8/理研
野村 昌治	KEK-PF
濱石 佳孝	東大大学院工
林 好一	東北大金材研

東 保男	KEK共通系
日野 正裕	京大原子炉実験所
平野 馨一	KEK-PF
平野 雅嗣	JASRI/SPring-8
藤森 啓起	東大大学院工
舟橋 春彦	京大大学院理
間瀬 一彦	KEK-PF
宮原 恒あき	東京都立大理
百生 敦	東大大学院工
森 浩一	茨城県立医療大
森山 倫宏	神津精機 (株)
柳下 明	KEK-PF
矢橋 牧名	SPring-8/JASRI
湯城 磨	(株) 東芝
吉川 秀樹	東大大学院工
米山 明男	(株) 日立製作所 基礎研究所
渡辺 紀生	筑波大理工工学科
A. Souvorov	SPring-8/JASRI

## 【PF 将来計画に関する研究会 3】

「放射光マイクロビームと利用研究の展開」

提案代表者： 飯田厚夫（KEK-PF）

会期：平成 14 年 11 月 14 日（木）、11 月 15 日（金）

会場：高エネルギー加速器研究機構

4 号館セミナーホール

主旨：X 線のマイクロビームによる X 線計測技術は、放射光利用により始めて実用化のレベルに達した手法です。X 線領域では 1980 年代から本格的な開発が進み、X 線光学系の開発研究とともに応用研究も分光学的・X 線回折法の分野で進んでいます。

放射光の高い輝度を利用するマイクロビームの特性は、光源の性質に強く依存します。現在 PF では、将来計画としてエネルギー回収型ライナック（Energy Recovery Linac, ERL）をベースとした新光源を検討しています。ERL 光源の特長はいくつかありますが、超低エミッタンス（0.01nmrad）およびビーム形状が円形ということを生かせば、原理的には 10 nm オーダーのナノビームを得ることも可能と考えられます。本研究会は、このような ERL 放射光源でのナノビーム利用研究の可能性を視野に入れ、X 線マイクロビームとその利用の現状と展望に関する研究会として企画されたものです。

本研究会では PF で検討されている ERL をベースとした新光源計画案を加速器の立場から紹介していただくとともに、放射光マイクロビーム開発および利用研究に携わっている第一線の研究者にお集まりいただき、この分野の研究の現状と将来展望について議論することを目的としました。一方 ERL 計画は息の長い計画であることを考え、将来の発展の可能性を探るため、マイクロビーム技術と相補的な関係にあるイメージング技術（主に PEEM）とその応用、放射光以外の手法（今回は電子線回折）によるナノ構造の研究の現状、更にナノビームが実現したときに可能となる利用研究計画の提案も含めた会を意図しました。

数ミクロンのビームサイズを用いた X 線マイクロビーム利用研究は本格化してからほぼ 10 年の経験を持ち、第 3 世代 X 線リングではサブミクロンの X 線ビームを利用した応用研究が本格的に広がりつつあります。X 線集光素子もこの間に新しい光学系が実用化されてきました。また波動光学的な要素が重要な因子になって来ているのも光学系開発の新しい動きです。これらの延長上にナノビームの素晴らしい世界があると期待されます。しかし、一方で nm スケールでの X 線計測には単に試料のハンドリングの問題だけではなく、測定の本質にかかわる試料損傷・統計的揺らぎなどの問題も新たに提起されました。これらの議論が今後の放射光マイクロビームの方向性を考えていくための第一歩となれば幸いです。

## 【プログラム】

11月14日(木)

- 13:30 始めに 飯田厚夫 (KEK・PF)  
13:40 「PF 新光源計画について」 小林幸則 (KEK・PF)  
14:15 「ERL 挿入光源について」 山本 樹 (KEK・PF)  
14:50 「SPring-8 におけるマイクロビームと X 線顕微鏡開発の現状と将来展望」  
鈴木芳夫 (JASRI)

### 15:25 休憩

- 15:45 「SPring-8 分析 BL における顕微 X 線分光」 早川慎二郎 (広大・工)  
16:20 「マイクロビーム X 線分析の実際と将来への期待と課題」 中井 泉 (東理大)  
16:55 「PEEM による触媒反応機構の研究」 朝倉清高 (北大)  
17:30 「PF における X 線マイクロビームとその応用」 飯田厚夫 (KEK・PF)

### 18:00 懇親会

11月15日(金)

- 9:00 「SPring-8 兵庫県ビームラインにおける位相ゾーンプレートを用いたマイクロビーム光学系の開発と応用」 籠島 靖 (姫工大)  
9:35 「X 線回折/散乱及びイメージングへの応用」 雨宮慶幸・野末佳伸 (東大・新領域)

### 10:10 休憩

- 10:30 「微小領域・微小試料の組織・構造の解析」 大隅一政 (KEK・PF)  
11:05 「収束電子線によるナノマテリアル解析」 津田健治 (東北大)  
11:40 「放射光構造物性からのコメント」 澤 博 (KEK・PF)

### 11:50 昼食

- 13:00 「平行マイクロビームの半導体デバイスへの応用」 松井純爾 (姫工大)  
13:35 「超高圧・高温実験とマイクロビームの果たす役割」 八木健彦 (東大)  
14:10 「ナノテクノロジーへの新しい応用」 尾嶋正治・小野寛太 (東大)  
14:45 「生命科学への新しい応用」 若槻壮市 (KEK・PF)  
15:20 終わりに

PF研究会3 参加者リスト (五十音順)

朝倉 清高	北大触媒化学研究センター
足立 純一	KEK-PF
雨宮 健太	東大大学院理
雨宮 慶幸	東大大学院新領域
飯田 厚夫	KEK-PF
飯原 順次	住友電気工業(株)
宇佐美 徳子	KEK-PF
大隅 一政	KEK-PF
奥田 浩司	京大国際融合創造
小野 寛太	KEK-PF
籠島 靖	姫工大
加藤 茂樹	KEK加速器施設
河田 洋	KEK-PF
北島 義典	KEK-PF
日下 勝弘	KEK-PF
小林 克己	KEK-PF
小林 正典	KEK-PF
小林 幸則	KEK-PF
佐々木 聡	東工大応セラ研
佐々木 泰三	KEK
佐多 永吉	東大大学院地球惑星科学
澤 博	KEK-PF
篠原 佑也	東大工
清水川 豊	姫工大高度産業科学技術研究所
鈴木 守	KEK-PF
鈴木 芳生	SPring-8
高田 一広	キヤノン (株) 中央研究所
高橋 由美子	日本大学 理工学部
多田野 幹人	KEK-PF
津田 健治	東北大多元研
中井 泉	東理大
中川 武志	KEK-PF
沼子 千弥	徳島大総合科学部
野間 敬	キヤノン (株)
野村 昌治	KEK-PF
早川 慎二郎	広大大学院工
平野 馨一	KEK-PF
平林 幹啓	東大大学院理

平松 成範	KEK加速器施設
古屋 貴章	KEK加速器施設
間瀬 一彦	KEK-PF
松井 純爾	姫工大大学院理
松下 正	KEK-PF
向出 大平	キヤノン (株)
森山 倫宏	神津精機 (株)
八木 健彦	東大物性研
山口 有朋	東理大理工
山本 樹	KEK-PF
米山 明男	(株) 日立製作所基礎研究所
若槻 壮市	KEK-PF



## Appendix III : 報告書作業メンバー

### 作業の経緯

PF 次期計画として 4 GeV リングに基づく PF-II が 1999 年頃に提案された。その後、PF 研究施設内に PF-II 検討世話人会が発足し (2001.4) PF 将来計画を多角的に検討した。Multi-pass 型 ERL とリング型光源のアイデアはこのグループにより検討された。一方物質構造科学研究所運営協議員会の下に「放射光将来計画検討ワーキンググループ」が設けられていたが、その中に加速器検討作業グループと利用研究作業グループが組織され (2002.7) 将来計画の具体的な検討が行われ、本報告の作成を行った。PF-II 検討世話人会はこの作業グループに発展的に解消した。PF 懇談会においても、将来計画利用専門委員会が設けられ、PF 施設とユーザグループの連携を検討した。一方加速器施設においては 2001 年以降 ERL 検討会が定期的に開催され加速器技術上の課題が検討されてきた。ERL 検討会は上記加速器検討作業グループの母体となっている。

なお、下記のお名前をあげた皆様以外にも、多くの所内スタッフおよびユーザー、放射光関係者からご協力を得たことを深く感謝する。

### 放射光将来計画検討ワーキンググループ

雨宮慶幸 (東大院・新領域)、太田俊明 (東大院・理)、小杉信博 (分子研)、下村 理 (原研)、谷口雅樹 (広島大)、村上洋一 (東北大院・理)、  
松下 正 (委員長)、神谷幸秀 (加速器研究施設)、小林正典、大隅一政、野村昌治、河田 洋、若槻壮市 (物構研)

### 放射光将来計画加速器検討作業グループ

神谷幸秀、榎本収志、横谷馨、諏訪田剛、斎藤健治、古屋貴章、大沢哲、栗木雅夫、平松成範 (以上加速器施設) 春日俊夫、坂中章悟、小林幸則、山本樹、大見和史、原田健太郎、梅森健成 (以上 PF)

### 放射光将来計画利用研究作業グループ

飯田厚夫、(装置) 野村昌治、岸本俊二、平野馨一、(X線) 河田洋、岩住俊明、鈴木守 (SX・VUV) 柳下明、間瀬一彦 (以上 PF)

(下線は世話人。以上は 2002.7 時点でのメンバー。随時メンバーへの参加を依頼した。)

### PF-II 検討世話人会 (2001.4~2002.8)

野村昌治、伊澤正陽、岩住俊明、河田 洋、小林幸則、間瀬一彦

PF 懇談会会長 佐々木 聡 (東工大・応セ研)

Pf 懇談会将来計画利用専門委員会委員長 高橋敏男（東大・物性研）

#### ERL 検討会

神谷幸秀、榎本収志、横谷馨、菖蒲田義博、斎藤健治、古屋貴章、大沢哲、栗木雅夫、菅原龍平、平松成範、加藤直彦、木原元央、高田耕治、鎌田進、大見和史、諏訪田剛、赤井和憲、野口修一、設楽哲夫（以上加速器施設）、小林幸則、小林正典、春日俊夫、三橋利行、山本樹、芳賀開一、本田融、帯名崇、原田健太郎、坂中章悟（以上物構研）

#### 執筆者一覧

##### 第2章

腰原伸也（東工大）、近藤健一、中村一隆、弘中陽一郎（東工大応用セラ研）、横山利彦（分子研）、近藤 寛、雨宮健太（東大理）、山内 薫（東大理）、百生 敦（東大院工）、並河一道（東京学芸大）、石川哲也（理研・播磨研）、鈴木芳夫（JASRI）、西野吉則（JASRI/理研・播磨研）、朝倉清高（北大・触媒センター）、松井純爾、籠島靖、津坂佳幸（姫工大・理）、若林克三（阪大・基礎工）岩住俊明、間瀬一彦、那須奎一郎、澤 博、平野馨一、飯田厚夫、大隅一政、小野寛太、若槻壮市、加藤龍一、柳下明、河田洋、小林克己、野村昌治、岸本俊二（物構研）

##### 第3章

神谷幸秀、榎本収志、横谷馨、菖蒲田義博、斎藤健治、古屋貴章、大沢哲、栗木雅夫、菅原龍平、平松成範、加藤直彦（加速器施設）小林幸則、小林正典、春日俊夫、三橋利行、山本樹、芳賀開一、本田融、帯名崇（物構研）波戸芳仁、伴秀一、佐々木慎一（放射線科学センター）